

THESE

présentée

DEVANT L'UNIVERSITE CLAUDE BERNARD (LYON 1)

pour obtenir

LE DIPLOME DE DOCTEUR DE SPECIALITE (3^e cycle)

EN PHYSIQUE (SPECTRONOMIE)

par

Jean - Louis SUBTIL

Licencié es Sciences

UTILISATION D'UNE SOURCE H.F.

POUR LA PRODUCTION D'IONS LOURDS.

APPLICATION A L'ETUDE DU SPECTRE DU CHLORE.

Soutenue le **23 mars 1971**

devant la Commission d'Examen.

MM. A. SARAZIN

M. DUFAY

J. D'INCAN

J. DESESQUELLES

Président

} Examineurs

THESE

présentée

DEVANT L'UNIVERSITE CLAUDE BERNARD (LYON 1)

pour obtenir

LE DIPLOME DE DOCTEUR DE SPECIALITE (3^e cycle)

EN PHYSIQUE (SPECTRONOMIE)

par

Jean - Louis SUBTIL

Licencié es Sciences

UTILISATION D'UNE SOURCE H.F.

POUR LA PRODUCTION D'IONS LOURDS.

APPLICATION A L'ETUDE DU SPECTRE DU CHLORE.

Soutenue le 23 mars 1971,

devant la Commission d'Examen.

MM. A. SARAZIN

Président

M. DUFAY

J. D'INCAN

J. DESESQUELLES

} Examinateurs



UNIVERSITE CLAUDE BERNARD - Lyon 1 -

Président : Monsieur le Professeur J. BOIDIN.
1er Vice-Président : Monsieur R. TOURAINE, Maître de Conférences agrégé.
2ème Vice-Président : Monsieur P. PONCET, Maître-Assistant.
3ème Vice-Président : Monsieur D. SETTELEN, Etudiant.

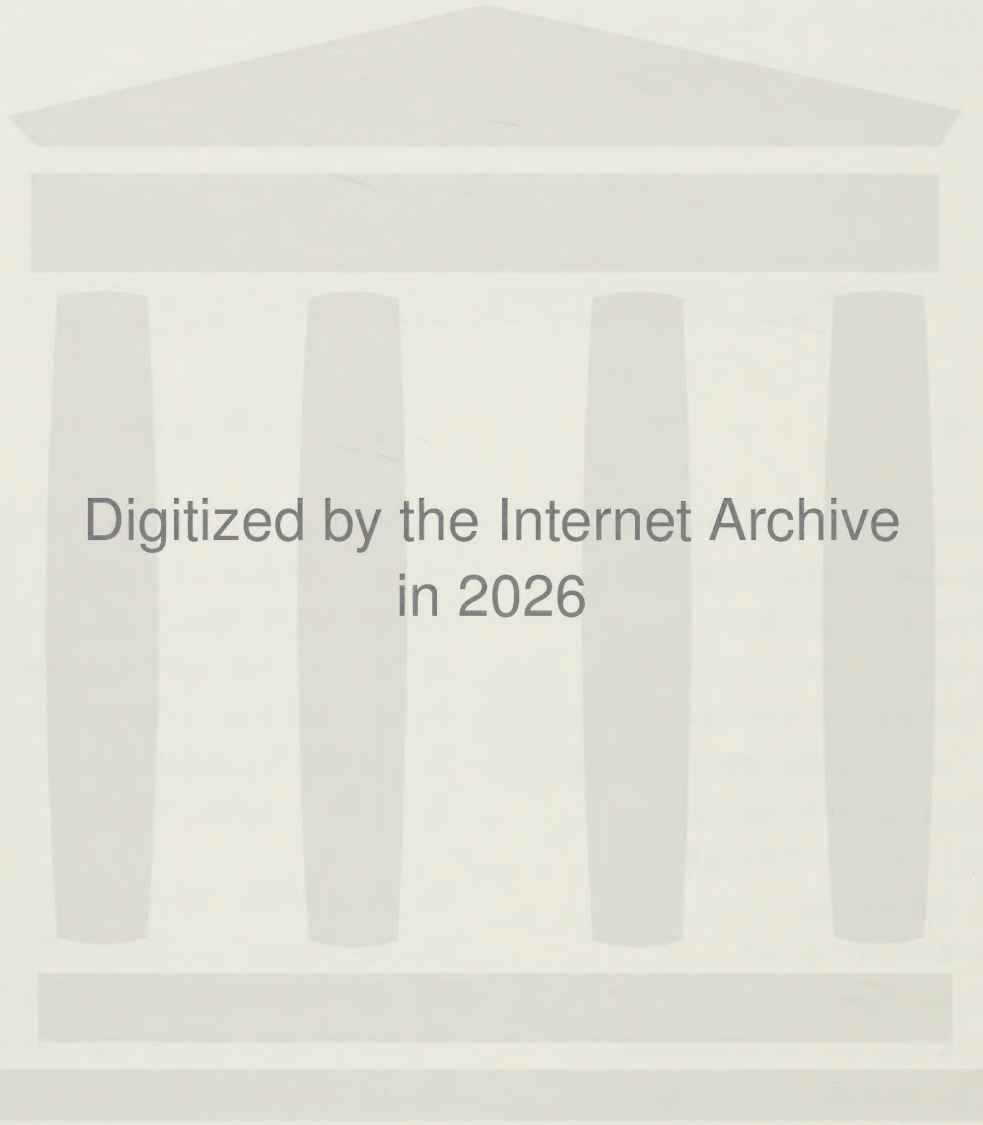
UNITES D'ENSEIGNEMENT ET DE RECHERCHE

UNITES

DIRECTEURS

U.E.R. médicale Grange-Blanche	M. le Professeur D. GERMAIN
U.E.R. médicale Alexis-Carrel	M. R. TOURAINE, Maître de Conférence
U.E.R. médicale Lyon-Nord	M. le Professeur A. BERTOYE
U.E.R. médicale Lyon-Sud-Ouest	M. le Professeur L. TOLOT
U.E.R. des Sciences pharmaceutiques	M. M. CARRAZ, Maître de Conférences
U.E.R. des Techniques de Réadaptation	M. le Professeur P. MOUNIER-KÜHN
U.E.R. de Biologie humaine	M. J.C. CZYBA, Maître de Conférences
Institut Régional d'Education Physique et Sportive	M. J. SAPIN, Professeur E.P.S.
U.E.R. de Mathématiques	M. le Doyen J. BRACONNIER
U.E.R. de Physique	M. le Professeur M. DUFAY
U.E.R. de Chimie et Biochimie	Mle le Professeur D. GAUTHERON
U.E.R. des Sciences de la Nature	M. le Professeur L. DAVID
U.E.R. de Biodynamie et de Psychopédagogie	M. le Professeur J. CHANEL
U.E.R. de Physique Nucléaire	M. le Professeur A. SARAZIN
Institut Universitaire de Technologie I	M. le Professeur L. FEUVRAIS
Institut Universitaire de Technologie II	M. J. GALLET
Observatoire	M. le Professeur J.H. BIGAY

Secrétaire Général : M. N...



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41552607_0008

Monsieur le Professeur DUFAY, Directeur de l'U.E.R. de Physique m'a donné ce sujet d'étude et a dirigé mes recherches au Laboratoire de Physique de l'Atmosphère ; je lui exprime ma profonde reconnaissance.

Je remercie Monsieur le Professeur SARAZIN, Directeur de l'Institut de Physique Nucléaire, qui m'a fait l'honneur de présider le jury.

Monsieur le Professeur D'INCAN a bien voulu témoigner son intérêt pour ce travail en acceptant de faire partie du jury. Je lui adresse mes sincères remerciements.

J'exprime toute ma reconnaissance à Monsieur DESESQUELLES pour son aide et ses conseils constants ; il m'a fait profiter de sa large expérience et je lui en suis gré.

Que tous mes collègues, chercheurs et membres du personnel technique soient remerciés de leur dévouement et de l'aide qu'ils m'ont apporté.

Madame LAGRIFFOUL et Madame DAMMAN ont assuré la réalisation de ce mémoire, je les en remercie vivement.

T A B L E D E S M A T I E R E S

	Pages
Introduction	1
Chapitre I - REVUE RAPIDE DES SOURCES D'IONS LOURDS	3
Chapitre II - DESCRIPTION DU MONTAGE REALISE	15
Chapitre III - MISE AU POINT DE LA SOURCE ET DE L'ACCELERATEUR	24
Chapitre IV - SPECTRES DE MASSE OBTENU AVEC FeCl_3	35
Chapitre V - APPLICATION A L'ETUDE SPECTROSCOPIQUE D'UN FAISCEAU D'IONS Cl^+	45
Conclusion	65
Bibliographie	67

I N T R O D U C T I O N

Un certain nombre d'expériences relativement récentes ont montré l'intérêt de l'utilisation de faisceaux d'ions lourds en physique atomique et moléculaire, notamment en physique des collisions et dans la technique dite "Beam-foil spectroscopy".

Or à partir des sources classiques montées sur les accélérateurs électrostatiques, on ne peut obtenir qu'un nombre relativement limité d'espèces d'ions : H^+ , He^+ , A^+ , Kr^+ , Xe^+ , O^+ , N^+ . Il serait intéressant d'obtenir des ions lourds, en particulier des ions métalliques, pour lesquels, un certain nombre de données physiques : sections efficaces, forces d'oscillateur, paramètres de structure fine, sont inconnues ou mal connues. La connaissance de ces paramètres serait utile dans de nombreux domaines, en particulier en physique des plasmas et en astrophysique.

Dans le présent travail, nous avons essayé de développer une source d'ions lourds particulièrement simple, consistant en une source haute fréquence classique, avec admission latéral de vapeurs de composés métalliques. Après mise au point sur banc d'essai, la deuxième phase du travail consisterait en l'adaptation de cette source à un accélérateur classique SAMES ou VAN DE

Notre choix s'est fixé sur l'admission de vapeur de chlorure ferrique ; le but recherché étant d'obtenir une source d'ions Fe^+ et Cl^+ .

Après une revue rapide des divers types de sources d'ions lourds (chapitre I), et une description du banc d'essai utilisé (chapitre II), nous avons passé en revue l'influence sur le débit des différents paramètres de réglage (chapitre III). Dans le quatrième chapitre nous avons étudié les variations du spectre de masse des ions extraits en fonction de la température du four d'évaporation de FeCl_3 . La source réalisée s'est révélée très exploitable en ions Cl^+ . Nous l'avons utilisée pour une première étude du spectre du chlore atomique excité par collisions dans une cible gazeuse (chapitre V).

C H A P I T R E I

REVUE RAPIDE DES SOURCES D'IONS LOURDS

Les sources d'ions lourds sont utilisées sur un grand nombre d'appareils scientifiques. Citons les séparateurs d'isotopes, les accélérateurs de particules, les microscopes ioniques... De nouveaux procédés technologiques et industriels emploient de plus en plus couramment des faisceaux d'ions : dopage de semi-conducteurs, micro-électronique... LA bibliographie traitant des différents types de sources est abondante.

Certes, de grands progrès ont été réalisés dans ce domaine ; cependant, la technique des ions lourds, bien que généralement simple dans son principe, rencontre de sérieuses difficultés, quant à son utilisation sur certains appareils de recherche. Tel est le cas de l'adaptation sur les accélérateurs électrostatiques Van de Graaff. 2 MeV, de sources d'ions métalliques. En effet, la puissance disponible pour la source, portée à la haute tension d'accélération, est limitée (inférieur à 500 W). Le nombre restreint de commandes à distance indépendantes élimine, par ailleurs, plusieurs types de sources de performances sûres que nous allons brièvement décrire dans la première partie de ce chapitre.

1 . 1 - PRINCIPAUX PARAMETRES DES SOURCES

Des études théoriques sur les sources d'ions montrent que les conditions du fonctionnement dépendent étroitement de la géométrie de la source, du moyen d'excitation utilisé, des propriétés physiques et chimiques des éléments à ioniser...

Une source d'ions est caractérisée, selon son utilisation, par un nombre plus ou moins élevé de paramètres. Parmi ceux-ci, nous pouvons citer :

- la température maximum nécessaire soit pour maintenir une pression suffisante dans la chambre de décharge, soit pour obtenir un degré d'ionisation important.
- la puissance consommée par la source,
- le débit de gaz ou de vapeur et le rendement d'ionisation,
- la pureté du faisceau d'ions, son intensité,
- la stabilité de fonctionnement,
- la vitesse des ions à la sortie de la source et la dispersion en énergie du faisceau,
- la proportion d'ions multichargés,
- l'encombrement de la source,
- le nombre de réglages indépendants,

1. 2 - DIFFERENTS TYPES DE SOURCES D'IONS

A - Sources à émission thermoionique et à ionisation de surface

Deux procédés utilisés couramment pour produire des ions alcalins et alcalino-terreux sont basés sur deux phénomènes complémentaires donnant naissance à la production d'ions.

L'émission thermoionique est due, pour une faible part, à la rupture des liaisons ioniques des molécules d'un sel porté à une température élevée.

Elle est complétée par l'ionisation de surface dont le principe repose sur la capture d'un électron périphérique d'un atome par une surface métallique appropriée, au cours d'un choc de la particule incidente avec la paroi. L'ionisation atteint un rendement acceptable pour des éléments à bas potentiels d'ionisa-

tion, tels que le lithium, le sodium, le potassium, le rubidium le césium... Il faut d'autre part utiliser comme cible, un métal caractérisé par un potentiel de sortie (ou potentiel d'extraction d'un électron) de grande valeur (Tungstène, nickel, platine ...) suivant la théorie de I.LANGMUIR et J.B.TAYLOR (1937)

Les travaux de BLEWETT et JONES (1936) puis de COUCHET (1954) ont mis en évidence les propriétés que possèdent les aluminosilicates alcalins : Al_2O_3 , $n SiO_2$, M_2O , d'émettre des flux intenses d'ions alcalins lorsqu'ils sont chauffés.

Au laboratoire, J.P. BOUCHET (1967) a fait l'étude d'une source d'ions lithium. Cette source a été adaptée par G. DO CAO sur l'accélérateur VAN DE GRAAFF. Elle a été utilisée aussi pour la production d'ions sodium et potassium.

Les sources à ionisation de surface sont très utilisées MARINO, et al (1962) et J.-J. WASSERBAUER (1936) ont décrit des sources d'ions césium. RAIKO, et al (1961) ont conçu une source d'ions potassium et rubidium en introduisant dans un creuset K et RbCl. M. BOURIAN (1967) a réalisé une source d'ions à émission thermoionique, transformable après quelques modifications en source à bombardement électronique.

B - Sources à plasma

Les sources à ionisation de surface et thermoioniques sont les seules à posséder une surface émissive bien déterminée, ce qui facilite l'extraction. Dans tous les autres cas, les ions sont extraits d'un plasma (ensemble électriquement neutre, de très haute densité : 10^8 à 10^{14} particules par cm^3). Celui-ci est créé par une décharge électrique dans un gaz ou une vapeur. Les ions sont extraits du plasma par une électrode portée à un potentiel négatif. La principale difficulté est de trouver une géométrie telle que le faisceau extrait soit intense, peu divergent et sans aberrations ; de plus, il ne doit pas bombarder les élec -

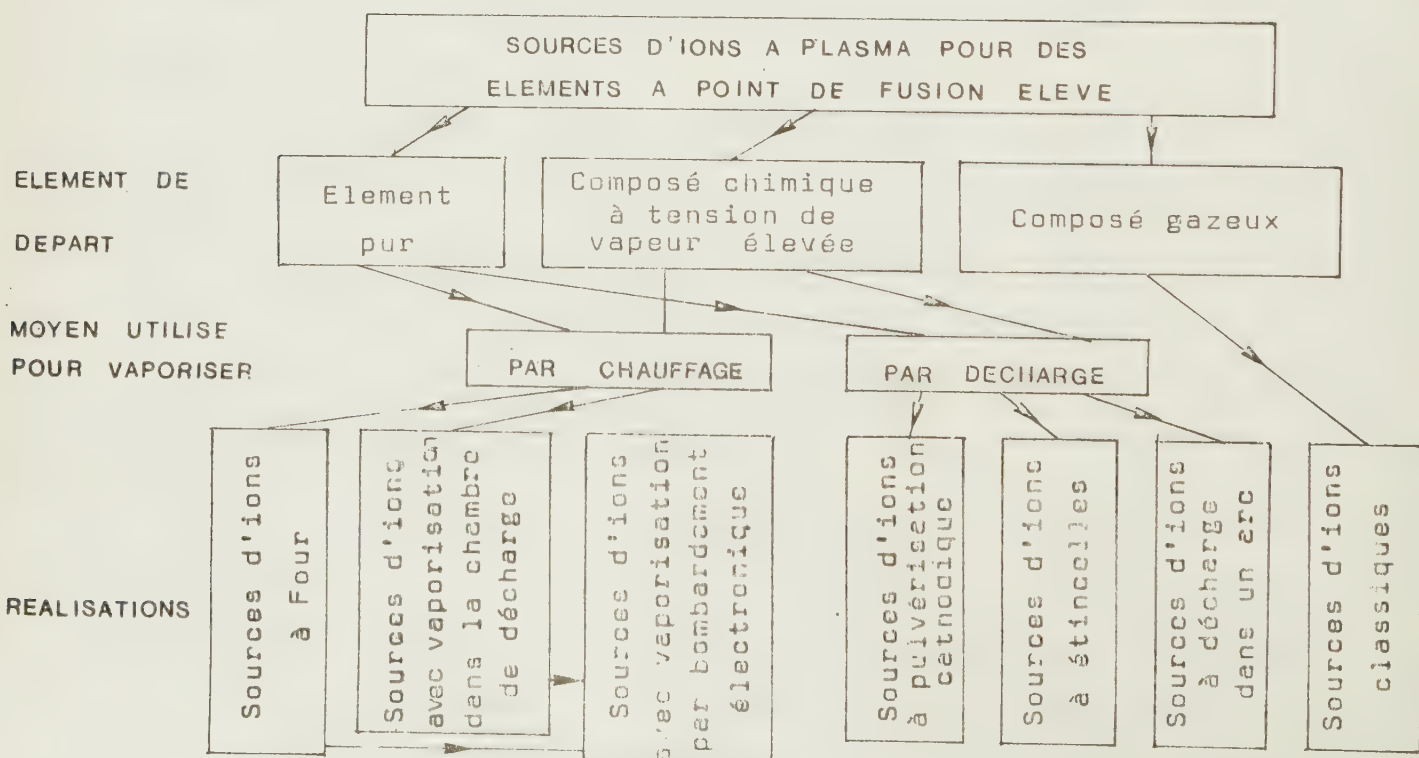
a) - Classification des sources d'ions lourds à plasma..

Lorsque l'élément à ioniser est sous forme gazeuse, (par exemple : O_2 , N_2 , gaz rares...) l'admission, dans la source, de l'élément à ioniser reste, dans la plupart des cas, simple. Le choix du type de source dépend de l'utilisation (Source H.F., source PENNING, source à cathode creuse de SIDENIUS, unoplasmatron duoplasmatron...).

Il n'en est pas de même, lorsque l'élément à ioniser est sous forme solide, surtout lorsque son point de fusion est élevé. Parfois, il est possible d'employer un composé chimique volatil (halogénure généralement).

La chloruration du produit peut se faire directement en introduisant dans un four, de la vapeur de tétrachlorure de carbone. Cette vapeur, au contact de l'élément chauffé à température convenable, produit un chlorure facilement entraîné dans l'enceinte d'ionisation (source universelle de NIELSEN...).

Le diagramme suivant donne une classification des différents types de sources d'ions à plasma, pour les éléments solides.



L'élément de départ, placé dans un four, ou directement dans la chambre de décharge est vaporisé par chauffage ou par décharge. La vapeur est généralement ionisée par bombardement électronique. Les électrons nécessaires pour réaliser ce bombardement sont émis par une cathode chaude. Ils sont accélérés par une différence de potentiel appliquée entre cette électrode et la chambre d'ionisation (jouant le rôle d'anode). Un procédé quelconque accroît le trajet des électrons à l'intérieur de l'enceinte d'ionisation ; il intensifie le nombre de chocs de ces électrons sur les atomes ou les molécules et, par conséquent, augmente le rendement d'ionisation.

Ce principe général des sources d'ions n'est pas applicable dans tous les cas. Il n'est pas suivi par exemple dans le cas des sources à décharge de haute fréquence. Dans la suite de cet exposé, nous allons présenter quelques sources particulières, souvent rencontrées dans la bibliographie.

b) - Source H.F.

Les sources d'ions à excitation électrique de haute fréquence (sources H.F. ou Radio Fréquence) sont très employées sur les accélérateurs de particules.

Robustes, stables, ces sources ne nécessitent pas un apport d'énergie élevé. La première réalisation, due à GETTING, en 1941, a été bien améliorée : voir par exemple, la mise au point bibliographique proposée par D.BLANC et A.DEGEILH (1961)

L'ionisation du gaz est due à un champ électromagnétique de haute fréquence. Ce dernier en effet produit une agitation électronique intense. Les électrons des couches externes des atomes sont libérés par chocs, alors que les ions, de mobilité faible conservent approximativement leur agitation thermique.

Surtout utilisées comme sources de protons, elles peuvent aussi produire des ions aux divers éléments.

est aussi possible d'obtenir des ions C^+ , Cl^+ , B^+ , F^+ en introduisant des composés chimiques gazeux tels que CO_2 , CCl_2 , ou CCl_4 , BF_3 , F_2 .

Notons que certains ions métalliques (métaux alcalins surtout) ainsi que quelques ions d'halogènes ont été produits par G.J. LOCKWOOD (1966), dans une source HF, en plaçant simplement une petite quantité de matière convenable, à l'intérieur de la source. La décharge HF est maintenue en admettant un gaz rare dans la source. Les intensités ioniques obtenues, après analyse sont excessivement faibles, de l'ordre de 10^{-9} A.

KOZLOV et al. (1961) ont obtenu, en introduisant Na Cl et Ni Cl₂ dans un four, des ions Na^+ , Cl^+ , Ni^+ . De même, des ions Si^+ , Ge^+ ... sont produits dans une source HF, en vaporisant Si Cl₄ et Ge I₄, par KOZLOV et al. (1962).

c) - Sources_à_arc_basse_tension

Particulièrement bien adapté aux températures élevées, ce type de source débite des courants intenses. Il équipe plusieurs séparateurs électromagnétiques d'isotopes. Différents auteurs donnent des descriptions détaillées : KISTEMAKER et al (1955), NIELSEN (1957), FREEMAN (1963), I. CHAVET (1965).

Afin d'éviter la condensation, les parois de la chambre de décharge doivent être portées à une température supérieure à celle du four d'évaporation. Ces parois constituent une partie ou la totalité de l'anode. La décharge a lieu entre cette électrode et une cathode chauffée. Un champ magnétique intense (plusieurs centaines à plusieurs milliers de gauss) augmente l'ionisation en donnant aux électrons, émis par la cathode, des trajectoires en forme d'hélices.

MAGNUSON, CARLSTON, MAHADEVAN et COMEAUX (1965) ont réalisé une source d'ions de ce type, montée sur un accélérateur VAN DE GRAAFF (3 MeV). La particularité de cette source provient du fait

que la chambre de décharge et le four de sublimation sont combinés dans une seule enceinte. Une réplique de cette source doit être essayée sur notre banc d'essai.

d) Unoplasmatron et duoplasmatron

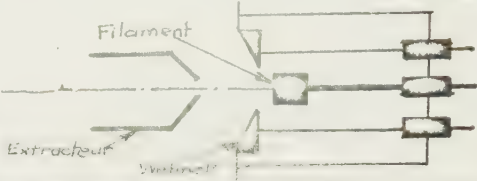
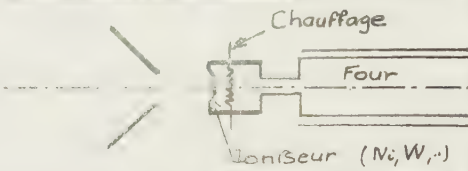
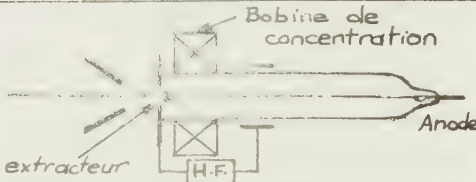
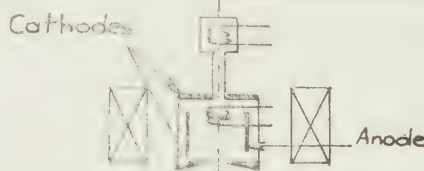
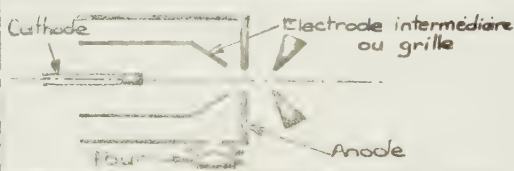
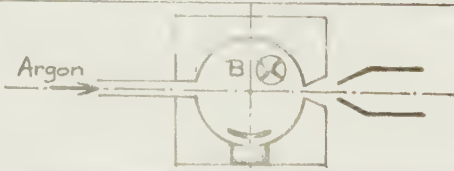
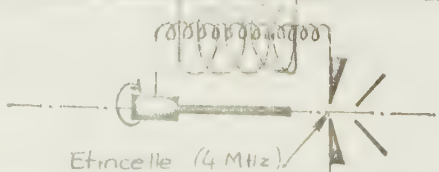
Dans les sources ci-dessus, le gradient intensité, la pression est élevée. Les risques de pollution du tube accélérateur interdisent l'agrandissement au delà d'une certaine limite, du trou d'extraction. Pour augmenter le courant extrait, il faut augmenter la densité j^+ du plasma. Les premiers exemplaires de ces sources sont dus à M. VON ARDENNE (1962) et à FROHLICH (1959).

Dans l'unoplasmatron, le plasma est comprimé par l'adjonction d'une ou de deux électrodes intermédiaires portées à des potentiels appropriés.

Le duoplasmatron est surtout utilisé pour les gaz et la technique de l'ionisation par champ électrique intense (0,1 à 1 Tesla) entre l'anode et une électrode intermédiaire encore appelée grille. Cette source n'a été que très peu employée avec les éléments métalliques, car il est nécessaire de refroidir le circuit magnétique afin de ne pas dépasser la température du point de Curie du fer. Cette température est trop basse pour éviter les condensations métalliques.

Certains constructeurs ont simplifié au maximum cette source, tout en conservant ses qualités propres, afin de l'adapter sur les accélérateurs électrostatiques. Citons ORTEC à OAK RIDGE et CSF à CORBAVILLE.

Tableau 1 . SOURCES D'IONS DE FAIBLE PUISSANCE

Type de source	Désignation	Représentation schématique	Puissance totale consommée	Température de fonctionnement
SOURCES A EMISSION THERMOIONIQUE ET A IONISATION DE SURFACE	S. I. lithium		70 à 100 w	1000 à 1200 °C
	S. I. K, Rb		≈ 10 kw	1000 à 2000 °C
SOURCES A PLASMA	S. I. H. F.		100 à 300 w	
	A arc basse tension		1,5 kw	jusqu' à 1100 °C
			1,5 kw	300 à 1600 °C
	uno - plasmatron		500 v à plusieurs kw	jusqu' à 650 °C
	duo - plasmatron		500 v à plusieurs kw	
	source à pulvérisation cathodique		2 kw	
SOURCES SPECIALES.	source à étincelle de haute fréquence			
	source à bombardement électronique d'une cible		≈ 3 kw	

POUR ELEMENTS A POINT DE FUSION ELEVE

Durée en heures	Intensité du faisceau	Nature des ions	Références bibliographiques
45	100 à 300 μ A	Alcalins	Buchet (1967)
40	40 à 120 mA	Alcalino - terreux terres rares	Raiko <i>et al</i> (1961)
longue	0,4 à 1 mA en protons	H^+ , H_2^+ , He^+ , Ne^{++} A^+ , O^+ , N^+ ... Cl^+ , C^+ , F^+	Blanc <i>et</i> Degeilh (1961) Kozlov <i>et al</i> (1960) Kozlov <i>et al</i> (1962) G.J. Loochwood (1966)
70	100 μ A	Ions métalliques	Kistemaker <i>et al</i> (1955) Ko Nielson (1957) J.H. Freeman (1963) I. Chavet Choueka (1965) Kozlov <i>et al</i> (1965)
70	60 μ A Zn^+	Ions métalliques Ex: Zn^+ , Al^+ , Cu^+ , Ag^+ , Au^+ , Fe^+	C.D. Magnuson <i>et al</i> (1965)
	99 μ A jusqu'à 200 mA		Von Ardenne (1962)
10 Avec solides	99 μ A jusqu'à plusieurs	gaz Li^+ , Cu^+ , Hg^+ , sb^+	Fröhlich (1959) Masic, Sautter, Warnecke (1969) Désesquelles (1963)
20	100 à 200 μ A	Ni, Fe, Ti, Mo, W, Ir X^{++} 25 % X^{+++} 3 %	B. Cobic <i>et al</i> (1963) W.L. Rautenbach (1960)
longue	1 à 10 μ A	Tous les ions	H.E. Duckworth (1950)
longue	80 à 120 μ A	Tous les ions métalliques	E.F. Krimmel (1966) E.F. Krimmel (1967)

e) - Autres sources

Le tableau des pages 10 et 11 donne les caractéristiques des sources les plus utilisées pour les éléments à point de fusion élevé. Nous n'avons mentionné que les sources de faible puissance, sans rentrer dans les détails de réalisation de chacune d'elles. La dernière colonne du tableau donne quelques références bibliographiques. Par ailleurs, une revue détaillée de telles sources a été faite par GABOVICH (1967).

Nous avons noté les sources à pulvérisation cathodique (appelées aussi "sources à sputtering"). Elles sont très utilisées sur les séparateurs d'isotopes. Les atomes à ioniser sont arrachés à la cathode bombardée par un faisceau d'ions accélérés (l'argon est en général utilisé comme gaz auxiliaire).

Les sources à étincelles équipent de nombreux spectrographes de masse d'analyse chimique.

D'autre part, une cible bombardée par un faisceau d'électrons accélérés s'échauffe localement à une température intense. Cette surchauffe ponctuelle est génératrice d'ions de toutes sortes. Le fonctionnement des sources utilisant ce processus d'ionisation est conditionné par un vide de très haute qualité, afin de limiter les recombinaisons.

Enfin, l'utilisation d'un faisceau laser donne des sources permettant d'obtenir des spectres de corps fortement ionisés ; cela présente un grand intérêt en astrophysique. Remarquons cependant que le temps entre deux pulses est important (quelques secondes). Ceci rend difficile l'utilisation de la source sur un accélérateur.

I. 3 - CHOIX D'UN TYPE DE SOURCE EN VUE D'OBTENIR DES IONS METALLIQUES

Il faut maintenant comparer le tableau précédent et le cahier des charges de l'accélérateur Van de Graaff 2 MeV de l'Institut de Physique nucléaire. Les conditions imposées sont très restrictives et les caractéristiques de la source d'ions doivent répondre aux conditions suivantes :

1) La puissance disponible, fournie par un alternateur, est délivrée par deux alimentations de 150 W chacune, sous une tension de 110 V, 60 Hz. La tension de focalisation est variable, jusqu'à 40 KV. La tension d'extraction, est inférieure à 2 KV.

2) La place laissée à la source, au sommet de la machine est restreinte. Elle se limite à une vingtaine de centimètres en hauteur. L'étude de la position des différents organes doit être, de plus, excessivement soignée, à cause des très hautes tensions.

3) Le tube accélérateur est enfermé dans une cloche sous pression (15 atmosphères). Son démontage, pour accéder à la source, doit être le moins fréquent possible. Il faut donc prévoir une durée de fonctionnement assez longue (100 à quelques centaines d'heures).

4) Le nombre de commandes, isolées électriquement, disponibles (3 ou 4), doit nous orienter nécessairement vers la réalisation d'une source possédant au maximum ce nombre de paramètres de réglages.

5) Un refroidissement par ventilation ne pose pas de difficulté. L'utilisation d'une circulation d'eau ou de fréon peut être envisagée. Sa réalisation est extrêmement délicate. En effet, à cause du gradient de potentiel élevé, le long du tube accélérateur, il faut employer un fluide très pur (grande resistivité).

Un nouvel accélérateur VAN DE GRAAFF, 2 MeV, horizontal, équipe notre laboratoire, à l'Institut de Physique Nucléaire. La puissance disponible s'élève à 500 W (une seule alimentation) sous 110 V et la hauteur réservée à la source atteint une cinquantaine de centimètres.

Les sources d'ions métalliques, telles que les sources à arc basse tension nécessitent un refroidissement énergique. En effet, un bobinage magnétique enveloppe l'enceinte d'ionisation. La température, importante dans l'enceinte d'ionisation, doit être limitée à environ 80°C autour de la source.

La source décrite par Magnuson et al. demande une puissance relativement importante. bien que la chambre d'ionisation soit petite. Il est à craindre qu'une élévation trop brutale de la température déclenche une vitesse d'évaporation trop rapide du produit ; aucun système ^{ne} vient en effet réguler cette vitesse. Le nombre de réglages indépendants est supérieur à quatre. Cette source ne peut donc être adaptée directement sur l'accélérateur.

Les sources à pulvérisation cathodique constituent certainement une solution valable pour extraire des ions métalliques, mais, le nombre de commandes nécessaires au fonctionnement de la source est trop élevé : il faut en effet contrôler le débit du gaz, l'intensité du courant cathodique, la tension anodique, la tension appliquée à la cible à bombarder, le réglage du champ magnétique et la tension de focalisation.

Devant la difficulté de mise au point et d'adaptation des sources à bombardement électronique, nous avons préféré utiliser, en la modifiant, une source simple qui est la source Haute Fréquence. Sur l'accélérateur VAN DE GRAAFF, le fonctionnement de ces sources laisse une commande inutilisée (le champ magnétique de concentration est fourni par des aimants permanents). Il nous reste donc une commande, celle de la température du four d'évaporation, par exemple.

C H A P I T R E I I

DESCRIPTION DU MONTAGE REALISE

La première partie de nos expériences a consisté à introduire dans la chambre d'ionisation de la source d'ions des vapeurs d'un sel de fer, afin de déterminer dans quelles conditions il est possible d'obtenir des ions métalliques tels que Fe^+ .

Généralement, le composé chimique utilisé est le chlorure ferreux FeCl_2 . Celui-ci demande une préparation chimique préalable car il se trouve difficilement sous forme anhydre; De plus, il est excessivement déliquescent, ce qui rend son utilisation délicate.

Le chlorure ferrique, un peu moins avide d'eau, se manipule plus aisément et, par chauffage dans le four, se volatilise à une température moins élevée. Notons d'ailleurs qu'il se décompose, pour une partie en chlorure ferreux, avec dégagement de chlore. ($\text{FeCl}_3 \rightarrow \text{FeCl}_2 + \frac{1}{2}\text{Cl}_2$)

II . 1 - LA SOURCE D'IONS

La figure (1) représente la source, montée sur son support. Nous avons modifié l'ampoule de la source H.F. utilisée sur l'accélérateur électrostatique SAMES (30-150 KeV) du laboratoire de Physique de l'Atmosphère. L'ionisation est due à une décharge électrique de haute fréquence (100 MHz) créée entre un anneau extérieur et la masse.

A l'ampoule en pyrex nous avons adjoint un appendice ; il est composé d'un capillaire, prolongé par un tube renfermant

la substance à évaporer ; le remplissage et la fermeture sont assurés au moyen d'un rodage normalisé N° 0. Le capillaire de 5/10 de mm de diamètre, long de 40 à 50 cm, limite le débit de vapeur. Le tube réservoir en pyrex, de 6mm de diamètre à une contenance de 4 à 5 cm³. Avant remplissage, un tampon de laine de quartz est disposé au fond ; il évite l'obturation du capillaire.

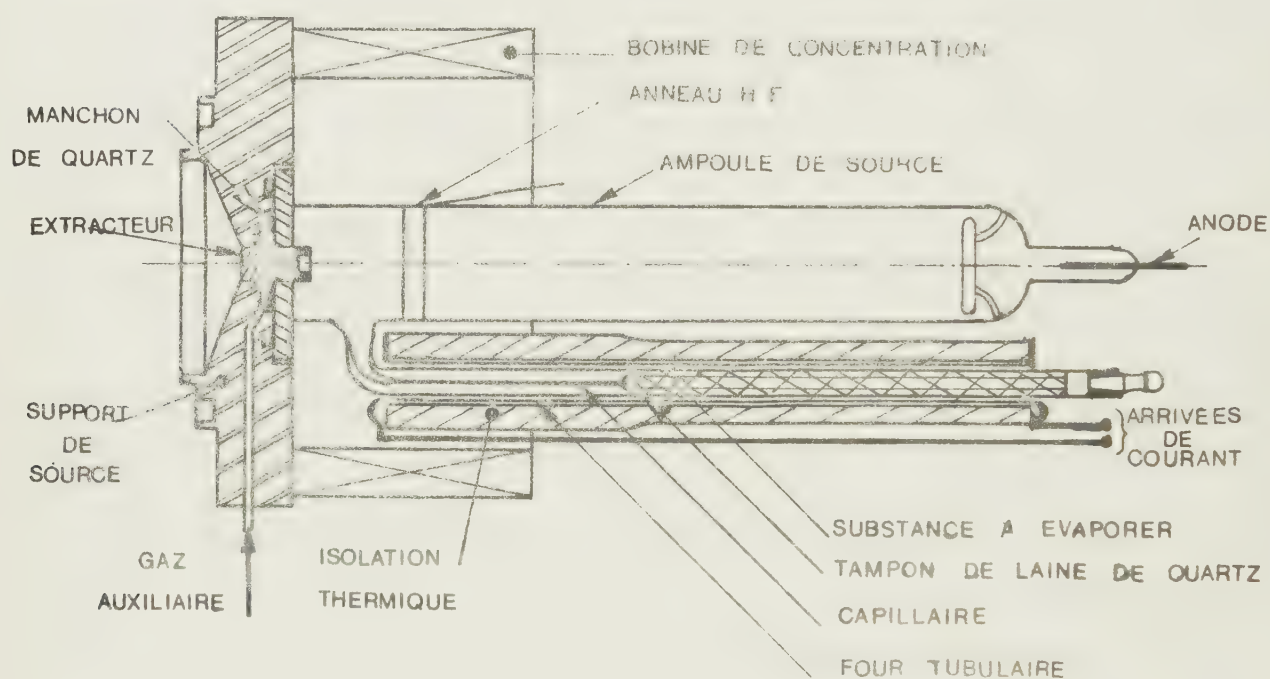


Figure 1 - MONTAGE DE LA SOURCE D'IONS

Le four, proprement dit, permet de chauffer le produit à différentes températures. C'est un tube de titane de diamètres intérieur et extérieur, 9 et 10 mm, long de 18 cm, traversé par un courant variable entre 0 et 70 A. Le choix de ce métal a été imposé par les conditions suivantes :

il faut un matériau non magnétique, afin de ne pas dévier les lignes du champ magnétique créé par la bobine de concentration.

- la résistivité du titane est très élevée : ($42 \cdot 10^{-6} \Omega \text{cm}$ à 20°C) alors que, pour le nickel elle est 5 à 6 fois plus faible ($7,8 \times 10^{-6} \Omega \text{cm}$ à cette température),

- le titane est d'autre part un matériau léger ($4,5 \text{g/cm}^3$), très résistant, il se travaille correctement.

Enfin, sa conductivité thermique est très faible ($0,0411 \text{ cal/s/cm}^\circ \text{C}$ à 20° , alors que pour le nickel elle est de $0.22 \text{ cal/s/cm}^\circ \text{C}$).

Les pertes de chaleur sont donc limitées entre l'intérieur du four et l'extérieur. L'isolation thermique a été améliorée par une frette de laine de verre entourée d'une bandellette d'amiante. La condensation dans le capillaire a été évitée par une isolation thermique accrue autour de ce tube.

La bobine de concentration, circulaire sur l'accélérateur SAMES a été étudiée spécialement, compte tenu de l'encombrement du four. Afin de créer un champ magnétique suffisant, sans dépasser la limite d'échauffement de la bobine, Nous avons utilisé une forme rectangulaire. Celle-ci laisse sensiblement homogène le champ magnétique axial au voisinage de la cathode :

Cette électrode percée, appelée extracteur, fixée sur le support de source, est en duralumin.

Le manchon de quartz permet d'isoler le plasma, de la cathode. Son rôle est très important, car il évite les claquages qui peuvent prendre naissance lorsque la cathode se recouvre de matières isolantes à l'intérieur de la source (dépôt dû à la condensation de la vapeur à l'intérieur de la source, traces d'huile de pompe)...

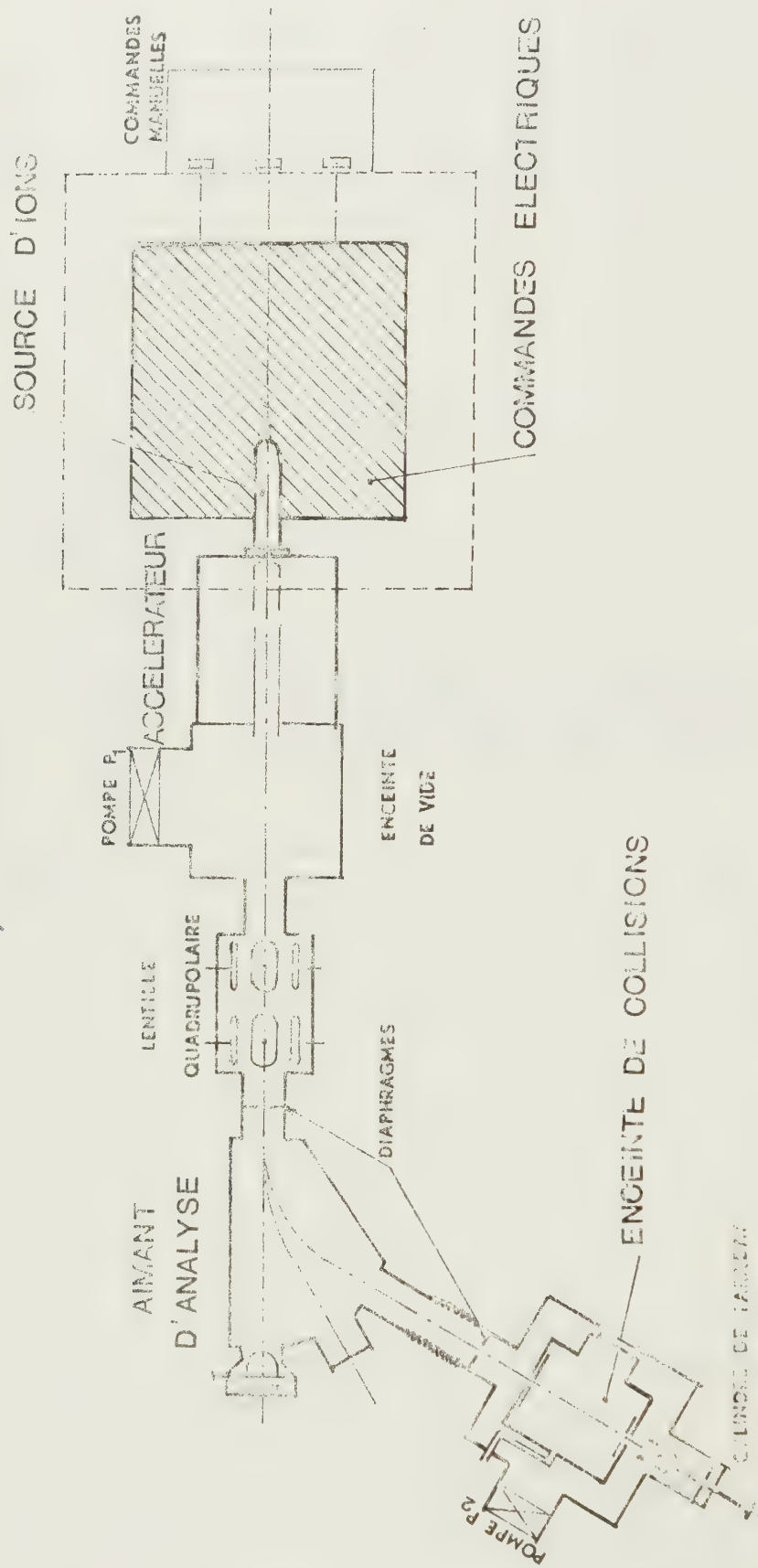


Fig. 1.2. BANC D'ETUDES EXPERIMENTALES

Le support de source, en duralumin, est percé d'un canal. Celui-ci permet l'admission d'un gaz dans l'ampoule, par l'intermédiaire d'une vanne mécanique. Ce gaz auxiliaire nous permet d'obtenir un ion classique tel que H^+ , He^+ , Ne^+ etc... et par suite d'étalonner l'analyse magnétique. Il a aussi été utilisé pour l'amorçage de la source. En effet, lorsque la durée de fonctionnement atteint une centaine d'heures, cette opération devient délicate (voire même impossible) avec la vapeur seule.

II. 2 - L'APPAREILLAGE

Le banc d'essai a été conçu au laboratoire de Physique de l'Atmosphère. Nous avons repris et modifié l'installation expérimentale réalisée par J.P. BUCHET (1967) lors de l'étude et de la réalisation d'une source d'ions lithium.

La figure (2) représente schématiquement l'ensemble du montage, composé essentiellement de :

- la source d'ions, avec ses commandes électriques et manuelles.
- l'étage d'accélération et de focalisation,
- la lentille quadrupolaire,
- l'aimant d'analyse,
- le dispositif de mesure du faisceau

II . 3 - L'ACCELERATEUR ELECTROSTATIQUE

A) Principe

La lentille électrostatique utilisée avec la source de lithium a été adaptée pour notre étude. Composée de trois électrodes, elle possède une partie divergente (accélération) et une partie convergente (focalisation). Elle est du type Einzel et équivaut à une lentille mince convergente . La figure (3) représente le montage utilisé.

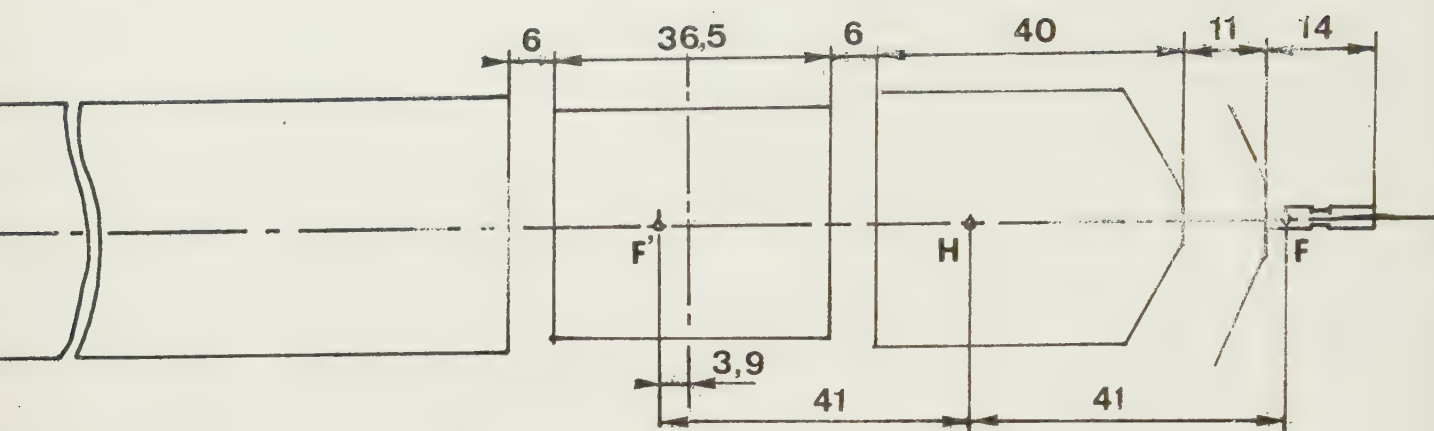


Figure 3 - LENTILLE ELECTROSTATIQUE

Nous avons tout d'abord fixé les distances intérélectrodes, de manière à éviter les claquages jusqu'à 30 KV (les risques de claquages sont importants au voisinage de l'extracteur, à cause de l'excès de vapeur provenant de la source). Les abaques tracés par LIPPERT et POHLIT, reproduits par VON ARDENNE (1962) nous ont permis de déterminer les caractéristiques optiques.

Compte-tenu de la distance focale, fixée à 41 mm, et de la position du point objet, situé en première approximation au milieu de l'extracteur, le point de focalisation image se trouve à une distance théorique de 460 mm de l'extracteur.

Le faisceau diverge suivant un angle légèrement supérieur à 1° . Afin de limiter l'élargissement et les pertes d'ions, il a été nécessaire de soumettre le faisceau à l'action focalisante d'une lentille quadrupolaire.

B) Installation Electrique Générale

La source d'ions et ses commandes électriques sont portées à la haute tension. Cette disposition correspond à celle des accélérateurs électrostatiques.

La haute tension d'accélération est fournie par une alimentation stabilisée (0. 30 KV, 0 - 20 mA, régulée à $\pm 0,25 \%$, d'ondulation résiduelle : 0,01% efficace). Elle est appliquée au bloc de commande de la source, disposée sur deux étages et qui comporte :

- l'oscillateur HF avec sa tétrode oscillatrice QQE-06-40
- l'alimentation de la haute tension d'extraction
- celle de la bobine d'extraction
- le circuit de chauffage du four
- le dispositif d'admission du gaz, commandé à distance [vanne mécanique].

La puissance requise au fonctionnement de la source est délivrée par l'intermédiaire d'un transformateur d'isolement.

La haute tension de focalisation, appliquée sur l'électrode intermédiaire de la lentille électrostatique est fournie par une deuxième alimentation stabilisée (5 - 30 KV, 0 - 8 mA, régulée à $\pm 0,025 \%$, d'ondulation résiduelle 0,015% efficace)

L'installation électrique générale est représentée sur la figure (4). Le schéma suivant (fig.5) donne les détails de la commande électrique de la source d'ions.

IV - LENTILLE QUADRUPOLAIRE ELECTROSTATIQUE

Elle est constituée de deux blocs identiques comprenant quatre électrodes en forme de secteurs cylindriques, montées dans un corps par l'intermédiaire de supports isolants. Le montage crée un champ focalisateur sans créer de champ accélérateur.

L'alimentation est assurée par deux générateurs à redresseurs, SAMES, type E 3001, commandés par deux alternostats indépendants.

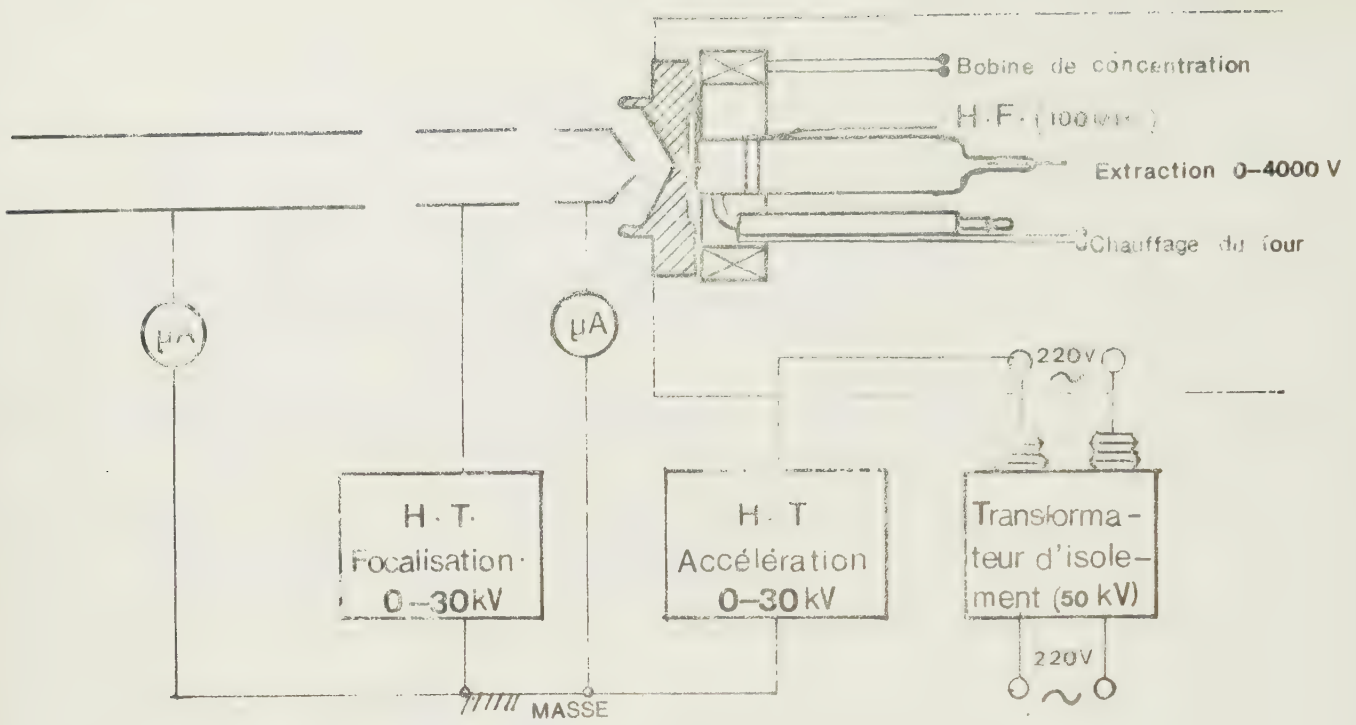


Figure 4 - INSTALLATION ELECTRIQUE GENERALE

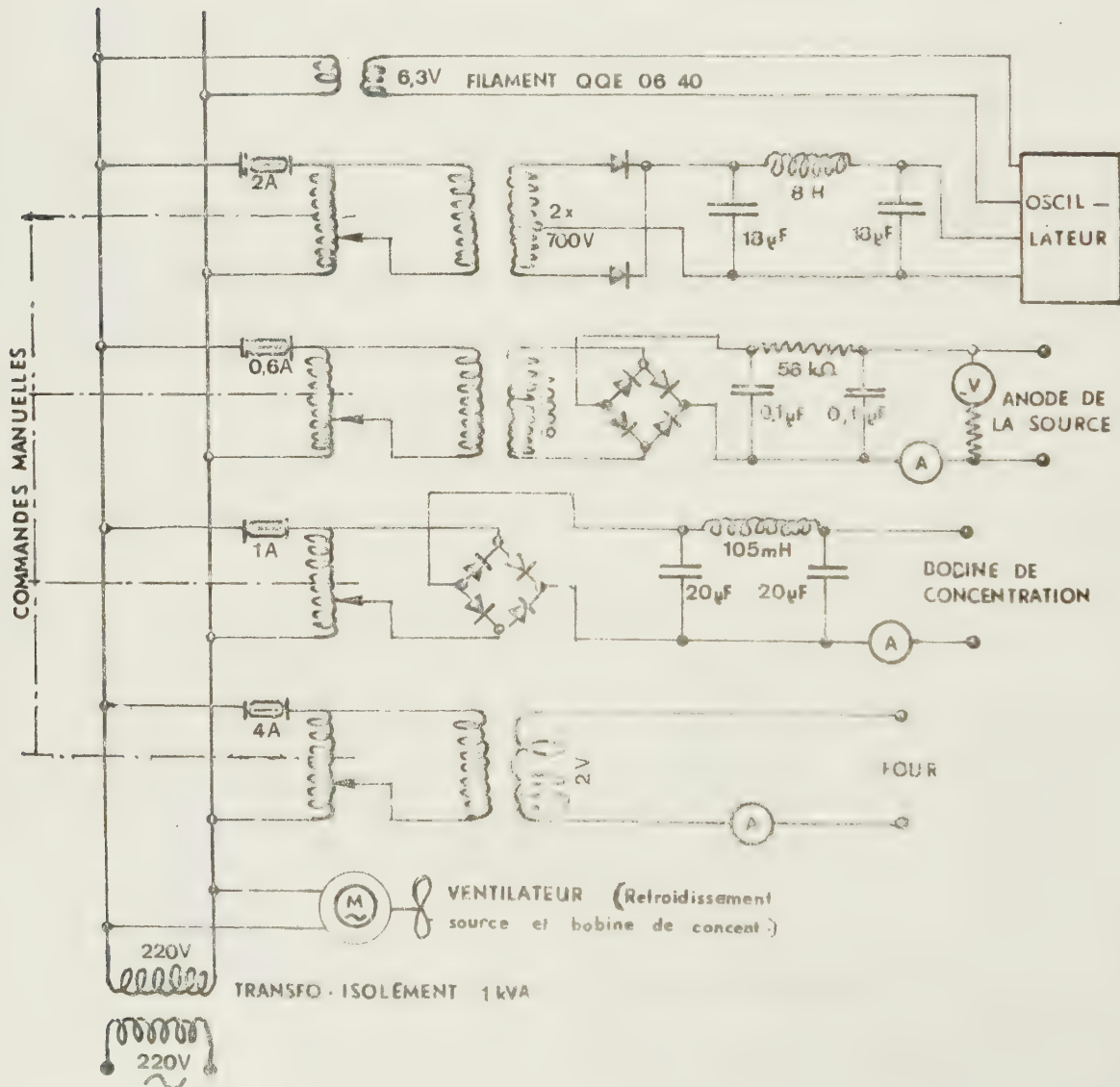


Figure 5 - COMMANDE ELECTRIQUE DE LA SOURCE D'IONS

II . 5 - DEVIATION MAGNETIQUE

L'analyse du faisceau extrait de la source, accéléré entre 5 et 30 KV, a été réalisée à l'aide de l'aimant d'analyse de l'accélérateur SAMES.

Pour une tension d'accélération de 25 KV, cet électro-aimant permet de dévier toutes les masses inférieures à 70.

L'automatisation de l'enregistrement des spectres de masses a été effectuée au moyen d'un petit moteur à réducteur (2 tr/mn). Celui-ci entraîne directement le bouton de réglage du courant dans l'électro-aimant.

La chambre de déviation possède trois voies de sortie. L'une est directe, les deux autres permettent les déviations à 30 et 60°. Nos mesures ont été effectuées par déflection à 60°.

II . 6 - MESURE DE L'INTENSITE DU FAISCEAU

Le faisceau d'ions est mesuré sur la voie directe et sur la voie à 60°. En direct, le faisceau peut être visualisé grâce à une fenêtre de quartz. Il est mesuré en escamotant devant ce hublot une plaque métallique mobile. Cette première mesure ne donne qu'un ordre de grandeur de l'intensité ionique, à cause de l'émission électronique secondaire. Convenons d'appeler dans la suite I_d la valeur du courant indiqué par le microampèremètre placé entre le hublot et la masse du montage.

Lorsque le faisceau est dévié à 60°, il est recueilli dans un cylindre de Faraday. Son intensité est mesuré avec un picoampèremètre. Il peut alors être enregistré.

C H A P I T R E I I I

MISE AU POINT DE LA SOURCE ET DE L'ACCELERATEUR

III . 1 - INTRODUCTION

La mise au point des différentes variantes de la source d'ions et de l'accélérateur a été réalisée sans analyseur magnétique. Les réglages de la source sont nombreux. Ils dépendent de paramètres géométriques et électriques. Nous nous sommes efforcés d'augmenter le courant d'ions tout en gardant une bonne stabilité de fonctionnement, sans claquage, pour des tensions d'accélération variant entre 5 et 30 KV.

a) Paramètres géométriques

Le fonctionnement de la source dépend en grande partie de la forme de l'extracteur et de la première électrode d'accélération. Les études faites à ce sujet sont nombreuses. Citons une étude expérimentale très détaillée faite par SERBINOV (1958), concernant l'influence des dimensions du système d'extraction sur les performances de la source. L'obtention d'un fonctionnement correct a nécessité plusieurs modifications. L'assemblage des différents éléments constitue une opération délicate et méticuleuse. Nous avons limité le nombre de démontages ; l'expérience acquise au laboratoire, sur les techniques relatives aux accélérateurs et aux sources d'ions, y a contribué. Notons qu'il aurait été préférable de travailler sur un montage plus compact, présentant moins de difficultés de centrage et de réglage. Cette amélioration sera à la base de travaux ultérieurs sur les sources d'ions.

b) Paramètres électriques

De très nombreuses caractéristiques électriques peuvent être tracées afin de préciser le rôle des différents paramètres. Si pour un point de fonctionnement donné, nous modifions un réglage, nous observons alors un maximum principal de la caractéristique, accompagné parfois de paliers et de maximums secondaires. Nous avons étudié plus en détail l'influence de la tension d'accélération et du courant de chauffage du four.

III . 2 - REGLAGE DU FAISCEAU

Le générateur de haute fréquence délivre la puissance HF maximum, pour un courant anodique de 230 mA. Nous avons travaillé le plus souvent avec un courant de 200 mA. La tension d'extraction a été fixée en général à 3000 V, quelquefois à 4000 V : mais, lorsque la source atteint la limite d'utilisation, nous n'avons pas dépassé 2500 V, à cause des risques de claquage importants. Il semble que ceux-ci proviennent, en grande partie, du dépôt de l'excès de vapeur sur les parois de l'ampoule de pyrex, sur le manchon de quartz, et sur l'électrode d'accélération. L'érosion chimique du canal d'extraction, quoique lente, diminue le rendement ionique.

Un premier réglage du faisceau, est fait en agissant uniquement sur la tension de focalisation et sur le courant dans la bobine de concentration. La mise en service de la lentille quadrupolaire permet de multiplier l'intensité du faisceau par un facteur supérieur à 10.

Les mesures des courants d'ions recueillis par les électrodes de l'accélérateur reliées à la masse et par les diaphragmes donnent d'utiles précisions sur la focalisation. En outre, ces mesures facilitent l'alignement du montage.

Convenons d'appeler $\sum I_p$ la somme des courants ainsi mesurés.

Désignons alors par I_a le débit de l'alimentation H.T. d'accélération. En négligeant d'une part les fuites dans les divers isolants placés entre l'ensemble source et la masse et en ne tenant pas compte, d'autre part, du flux d'électrons secondaires créé par bombardement électronique sur la première électrode, I_a représente l'intensité globale du faisceau extrait de la source.

De très nombreuses mesures ont été faites pour diverses énergies, entre 5 et 30 KeV. Dans la plupart des cas nous avons constaté que la somme des pertes reste très voisine de la différence $I_a - I_d$ (I_d est l'intensité observée à l'extrémité de la voie directe). Cependant, la répartition des intensités recueillies est variable d'une mesure à l'autre. Néanmoins, nous pouvons estimer, qu'en moyenne, I_d représente 50 à 60 % seulement du faisceau extrait de la source. 20 à 25 % des ions sont collectés par l'électrode d'accélération. 15 à 20 % se retrouvent sur la deuxième électrode. Ces pourcentages ne sont valables que pour les mesures faites avec des diaphragmes d'ouverture de diamètre important (10 mm). Le pourcentage des ions recueillis sur ces dernières est généralement très faible.

III . 3 - INFLUENCE DE LA TEMPERATURE DU FOUR SUR LE DEBIT GLOBAL DE LA SOURCE

La pression dans l'enceinte d'ionisation, liée au débit de vapeur, constitue un paramètre fondamental du fonctionnement. Le courant ionique extrait passe en effet par un maximum en fonction de la pression, comme le montre la figure (6).

Les conditions de mesures sont les suivantes :

- tension d'accélération : 15 KV.
- tension d'extraction : 3 KV.
- tension de focalisation : 14 KV.

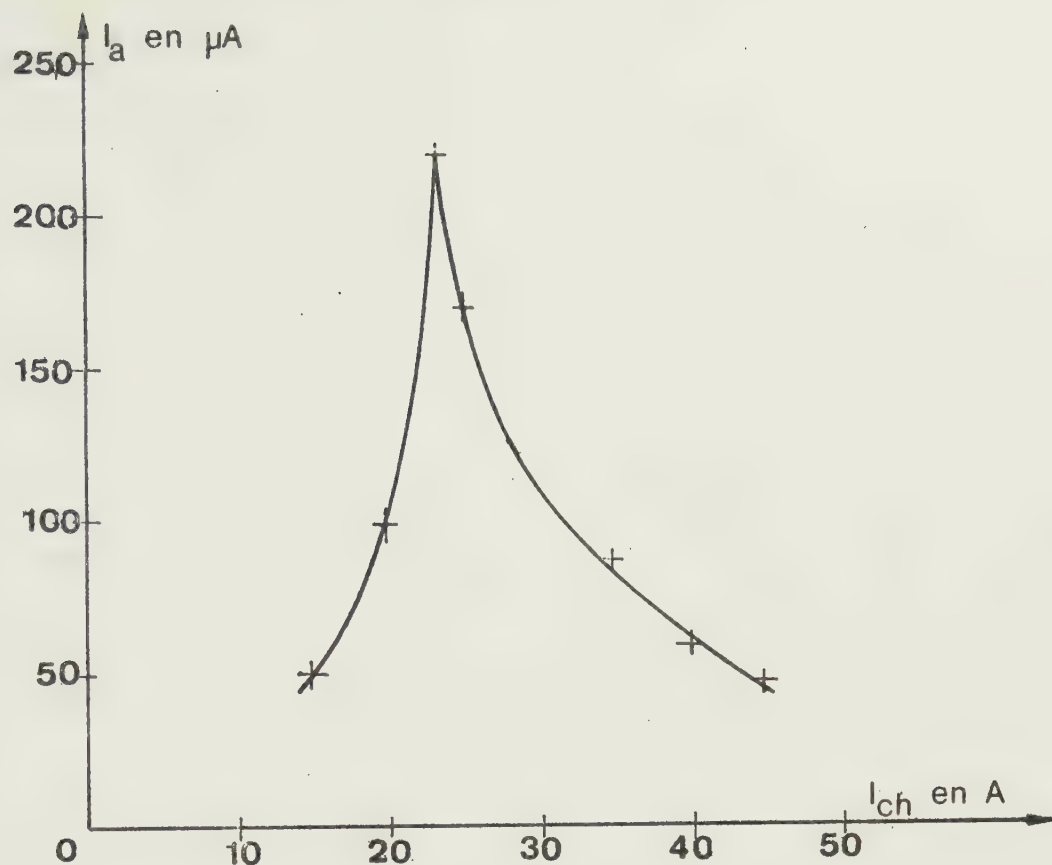


Figure 6 - DEBIT DE L'ALIMENTATION HT, AVEC $FeCl_3$, EN FONCTION DU CHAUFFAGE DU FOUR

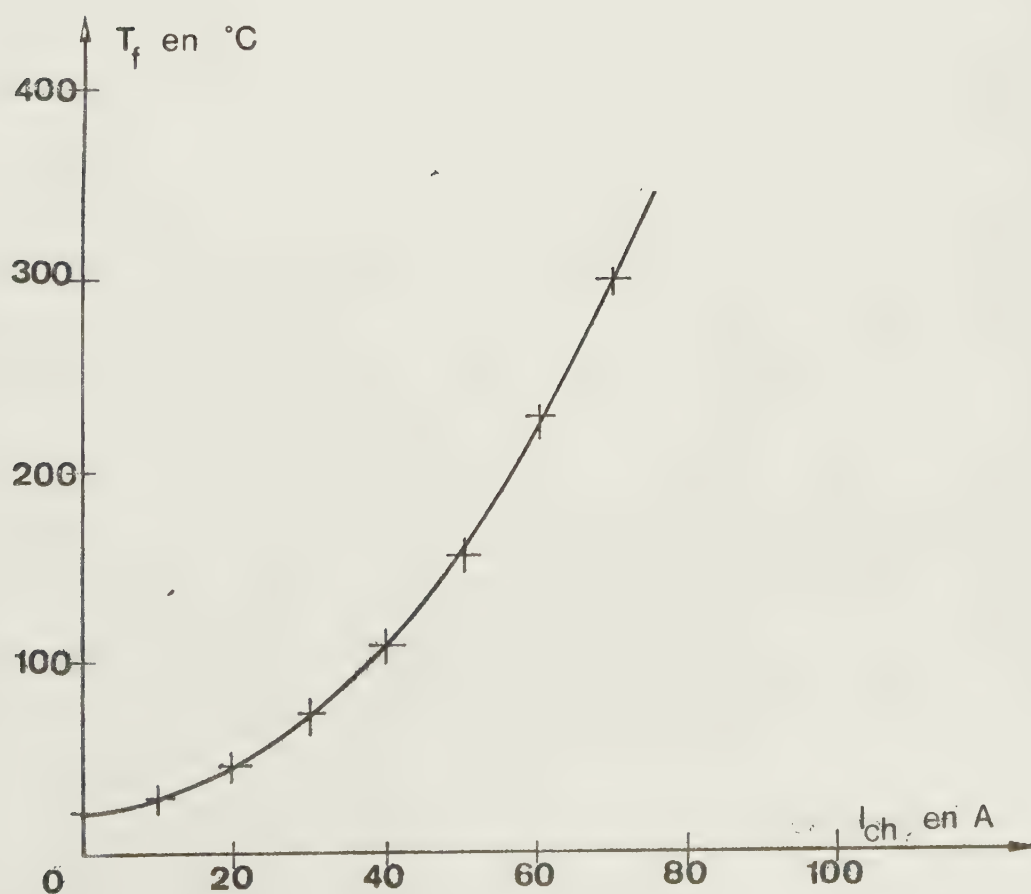


Figure 7 - TEMPERATURE A L'INTERIEUR DU FOUR

Nous avons tracé la courbe $I_a = f(I_{ch})$, I_{ch} étant le courant de chauffage du four, compris entre 10 et 45 A. La température T_f à l'intérieur du four n'est pas uniforme ; cependant nous avons tracé la courbe d'étalonnage donnant approximativement T_f en fonction de I_{ch} , à l'intérieur du tube contenant le sel de fer (figure 7).

Au fur et à mesure que la durée de fonctionnement de la source augmente, il est nécessaire d'accroître la température du four, pour conserver un débit ionique maximal ;

Cette évolution est expliquée par la transformation progressive du chlorure ferrique en chlorure ferreux.

En effet les tensions de vapeur suivent des lois de variations bien différentes, en fonction de la température, ainsi que le montre le tableau suivant :

pression mm. Hg	1	10	100
$FeCl_3$ (Fe_2Cl_6)	194 °C	236 °C	273 °C
$FeCl_2$	≈ 565 °C	700 °C	842 °C

III . 4 - VARIATION DU DEBIT IONIQUE AVEC LA NATURE DU GAZ INTRODUIT DANS LA SOURCE

A - Admission de gaz rares - Comparaison avec $FeCl_3$

Il est intéressant de comparer les intensités globales des divers faisceaux ioniques extraits, en fonction de la tension accélératrice. En utilisant la vanne mécanique, nous avons successivement introduit dans la chambre d'ionisation l'hélium, le néon, l'argon.

Sur la figure 8 les courbes $I_a = f(V_{HT})$ sont tracées pour ces gaz rares et $FeCl_3$.

La comparaison des résultats obtenus permet de constater une progression de l'intensité extraite lorsque nous passons de

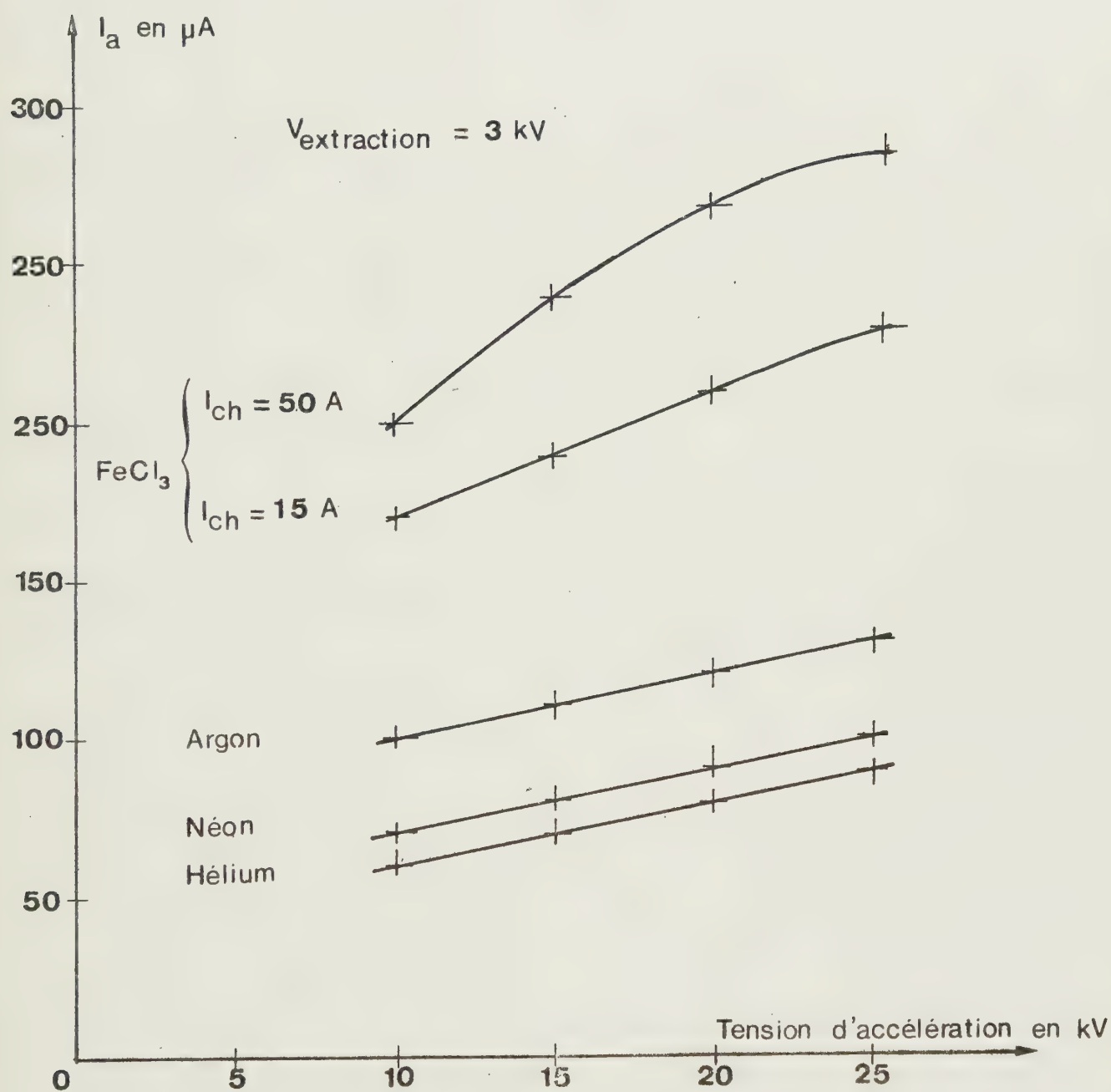


Figure 8 - DEBIT DE L'ALIMENTATION H.T.

l'hélium au néon puis à l'argon. De même, avec Fe Cl_3 , I_a devient environ deux fois plus intense qu'avec l'argon.

B - Généralités sur la formation du plasma

Le débit ionique de la source d'ions dépend de la tension d'extraction, de la pression, mais surtout de la densité des ions créés par la décharge haute-fréquence.

L'explication des phénomènes d'ionisation à l'intérieur de la source est très délicate. De nombreux processus primaires contribuent à la formation du plasma. Citons par exemple :

- l'ionisation par chocs ioniques,
 - par chocs électroniques
 - par échanges de charges
 - par chocs atomiques ou moléculaires
- l'ionisation de Penning...

De plus, des recombinaisons diverses ont lieu.

Cependant la présence du champ de haute fréquence donne aux électrons des vitesses très importantes. Ceci revient à dire que la température électronique augmente et prend des valeurs comprises entre $5 \cdot 10^4$ et 10^5 °K. Par contre, les ions, de masses beaucoup plus élevées, gardent pratiquement leur énergie thermique et la température ionique n'est que légèrement supérieure à la température du gaz. Comme la pression est faible dans la source, (environ 10^{-2} torr), le libre parcours moyen des molécules ou des ions, lié à la pression, donc au nombre de molécules par unité de volume, est de l'ordre de grandeur du centimètre. Les chocs entre les ions, les atomes et les molécules du gaz existent mais, l'ionisation est due essentiellement aux collisions électroniques.

Le résultat de la décharge dans un gaz est donc la production d'un gaz ionisé, contenant n_e électrons, n_i ions positifs et n_0 atomes ou molécules neutres par unité de volume. Dans le cas des sources d'ions, $n_0 \gg n_e$, $n_0 \gg n_i$.

Dans les plasmas en équilibre thermodynamiques des considérations macroscopiques montrent que $n_e = n_i$.

Dans les sources d'ions, comme dans les tubes électroniques, les effets de charge d'espace s'étudient en écrivant l'équation de Poisson :

$$\Delta V + \frac{\rho}{\epsilon_0} = 0$$

Soient μ_i et μ_e les mobilités respectives des ions et des électrons. Nous avons :

$$v_i = \mu_i \frac{dV}{dx}$$

$$v_e = \mu_e \frac{dV}{dx}$$

v_i et v_e sont les vitesses respectives des ions et des électrons, suivant l'axe de symétrie de la source.

Les électrons ayant une mobilité beaucoup plus importante que les ions diffusent beaucoup plus rapidement vers les parois, lors de l'établissement de la décharge. La recombinaison des électrons sur la paroi laisse le plasma localement positif. Un champ électrique va donc se créer. Il repousse les électrons et attire les ions, jusqu'à un équilibre des vitesses de diffusion des ions et des électrons, au voisinage de la paroi. On appelle ce phénomène la diffusion ambipolaire. Une gaine d'ions positifs se forme. Son épaisseur est de l'ordre de grandeur de la longueur d'atténuation de DEBYE. D'après THONEMANN (1953), la chute de potentiel entre le plasma et la paroi, qui s'effectue dans cette gaine, varie entre quelques volts et une trentaine de volts, suivant la nature du gaz et de la pression dans la chambre de décharge.

Portée à un potentiel fortement négatif, la cathode repousse les électrons et les ions diffusent pour former une gaine positive ou gaine de charge d'espace. Seuls les ions qui ont diffusé hors du plasma et pénétré dans la gaine peuvent être extraits. Son épaisseur, suivant les paramètres de fonctionnement,

peut atteindre la grandeur du libre parcours moyen des ions. Dans ce cas, les collisions entre particules de la gaine peuvent prendre de l'importance.

C - Influence des propriétés du gaz en supposant le régime de saturation atteint

D'après LANGMUIR (1931) la densité du courant pouvant être reçu par une sonde négative est limitée par la charge d'espace. Si V est la tension de la sonde par rapport au plasma, M la masse de l'ion et d l'épaisseur de la gaine :

$$J_+ = \frac{1}{9\pi} \sqrt{\frac{2e}{M}} \frac{V^{3/2}}{d^2}$$

J_+ est un courant de saturation. Il dépend de la densité ionique du plasma. Il est plus correct de donner, en fonction de J_+ la variation du potentiel dans la gaine.

$$V(x) = (9\pi)^{2/3} \left(\frac{M}{2e}\right)^{1/3} J_+^{2/3} x^{4/3}$$

La tension d'extraction étant fixée, pour toutes les expériences, ainsi que la puissance de l'oscillateur de haute fréquence, expliquons qualitativement la progression constatée entre les diverses intensités extraites, pour différents gaz admis dans la source.

Nous allons supposer le régime de saturation atteint dans tous les cas et les pressions voisines dans la chambre d'ionisation (de l'ordre de 10^{-2} torr). Il est nécessaire, d'autre part, de considérer un résultat consigné au chapitre IV, à savoir que, dans le cas de FeCl_3 , la plus grande partie du faisceau est composée de chlore atomique et de chlore moléculaire.

Le courant délivré par la source dépend de J_+ , donc du nombre d'atomes ou de molécules ionisées et animées d'une vitesse v dans la direction du champ électrique. La densité de charge est $\rho = n_+ e$ et la densité de courant $J_+ = \rho v$ s'écrit $J_+ = n_+ e v$.

Un électron du plasma est caractérisé par sa vitesse v_e .

Introduisons un potentiel V , tel que $\frac{1}{2} m v_e^2 = eV$.

Au cours d'une collision, nous pouvons dire qu'un électron de la couche externe d'un atome ou d'une molécule aura une chance d'être éjecté si le potentiel V de l'électron incident est supérieur au premier potentiel V_i des particules neutres.

Soit s le nombre d'ionisations créées par un électron d'énergie donnée par unité de longueur de trajectoire. s est appelé ionisation différentielle : (VON ARDENNE (1962), LÖB et SCHARMANN (1964), ou efficacité d'ionisation (VON ENGEL 1965). Il s'agit d'un phénomène primaire dépendant de la pression P et tel que le courant ionique J_i produit par unité de surface par un courant électronique J_e , sur un trajet l des électrons et donné par la relation

$$\boxed{J_i = J_e \cdot P \cdot S \cdot l}$$

$A/m^2 \quad A/m^2 \quad Torr \quad (Torr \cdot m)^{-1} \quad m$

La figure 9 représente la variation de l'efficacité d'ionisation s en fonction de l'énergie des électrons pour l'hélium, le néon, et l'argon.

Ces courbes sont croissantes pour les faibles énergies et ensuite décroissantes, lorsque V atteint plusieurs centaines de volts. Elles passent par un maximum pour des énergies comprises entre 70 et 120 eV, suivant le gaz considéré.

L'allure de ces courbes dépend étroitement des énergies d'ionisation V_i et de l'énergie des électrons V . Plusieurs équations sont proposées, suivant la gamme d'énergie considérée (cf. VON ENGEL, par exemple). Dans le tableau suivant, nous avons relevé quelques valeurs des potentiels d'ionisation V_i dans les tables de VON ARDENNE (1965).

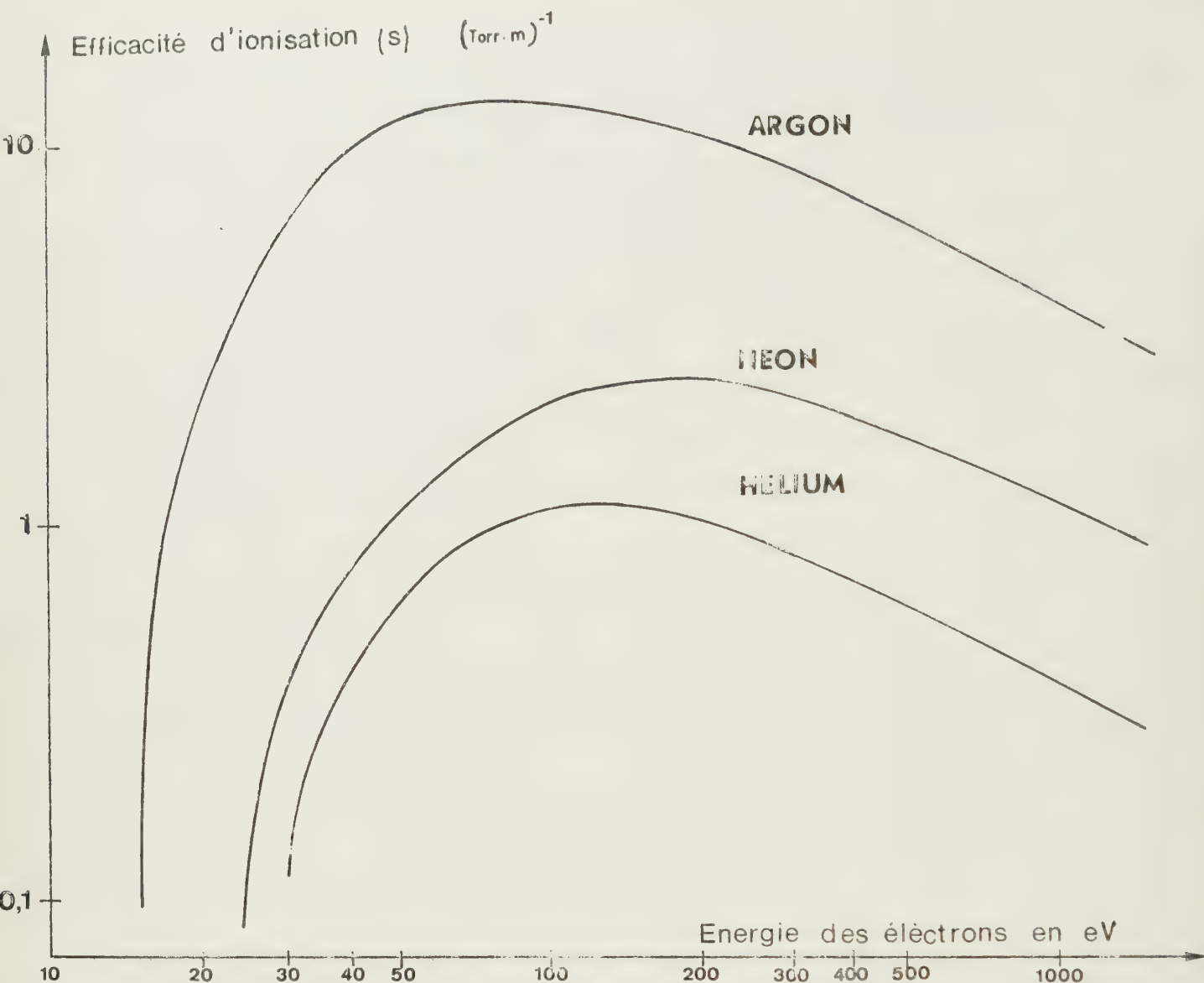


Figure 9 - EFFICACITÉ D'IONISATION DANS L'ARGON, LE NEON ET L'HELIUM EN FONCTION DE L'ENERGIE DES ELECTRONS

Atomes ou molécules	He	Ne	Ar	Cl	Cl ₂
Vi	24,58	21,56	15,75	13	11,8

Les énergies d'ionisations sont décroissantes de l'hélium au chlore moléculaire. Suivant l'allure des courbes de la figure (9), nous observons que l'efficacité d'ionisation augmente lorsque le potentiel d'ionisation décroît. Ainsi, nous constatons une corrélation entre l'observation des résultats de nos expériences et l'efficacité d'ionisation par chocs d'électrons sur les atomes ou les molécules neutres de l'air.

SPECTRES DE MASSE OBTENUS AVEC Fe Cl_3

Afin d'obtenir, après analyse, une intensité ionique importante, nous n'avons pas beaucoup diaphragmé le faisceau. Cette première étude, certes peu précise, nous a donné d'utiles informations et a guidé la suite de nos expériences.

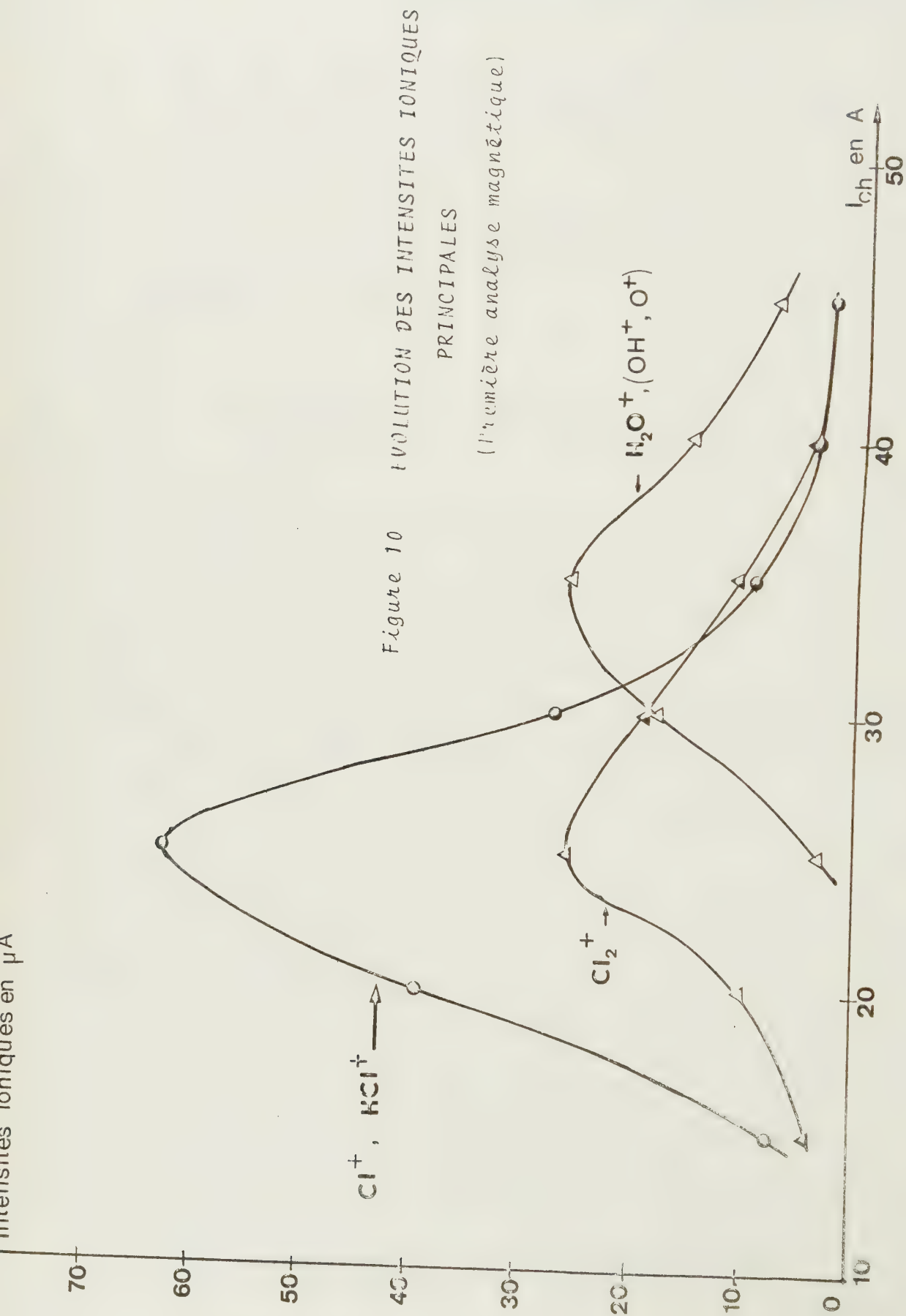
L'amélioration des conditions de mesures a permis l'analyse fine des spectres de masse qui constitue la deuxième partie de ce chapitre.

IV - 1. INFLUENCE DU CHAUFFAGE DU FOUR SUR LA COMPOSITION DU FAISCEAU

Nous avons dévié le faisceau à l'aide du dispositif général d'analyse étudié par J.P. BUCHET. Les conditions de mesures sont celles indiquées au paragraphe III. 4.

L'identification des masses, bien qu'approximative nous a permis de déceler les deux pics les plus intenses relatifs au chlore Cl^+ et Cl_2^+ . La figure (10) montre l'évolution des intensités ioniques principales en fonction du courant de chauffage (I_{ch}).

De plus, nous avons constaté la présence d'hydrogène atomique et moléculaire (0 à 2 μA). Le pourcentage d'ions O^+ , OH^+ , H_2O^+ (mal séparés) est faible (0 à 4 μA). Cependant, en chauffant plus, une forte intensité apparaît pour la masse 18 (fig.10). Ceci montre l'avidité du sel utilisé (anhydre) pour la molécule H_2O . Par suite, nous voyons qu'une élévation de température favorise l'élimination de cette impureté gênante. Nous avons donc recherché à libérer l'eau en présence dans le sel par un chauffage continu pendant plus d'une semaine, à température de plus en plus élevée.



Dans les spectres de masse apparaissent des ions de masses lourdes, voisines de 52 [entre 1 et 4 μA]. Malheureusement la masse 56 est absente.

Par contre, nous avons détecté de faibles courants ioniques correspondant approximativement aux masses 91 et 126 : (0,02 et 0,04 μA pour la première, 0 à 0,15 μA pour la seconde), ces masses correspondent à celles des ions FeCl^+ et FeCl_2^+ .

En chauffant beaucoup plus, nous avons remarqué une augmentation de l'ion ferreux (1 à 1,5 μA), tandis que FeCl^+ disparaissait.

Devant l'imperfection de ces mesures, nous ne pouvons pas conclure hâtivement, c'est pourquoi nous avons cherché à améliorer nos conditions d'analyse.

IV . 2 - ETALONNAGE DE L'ANALYSE MAGNETIQUE

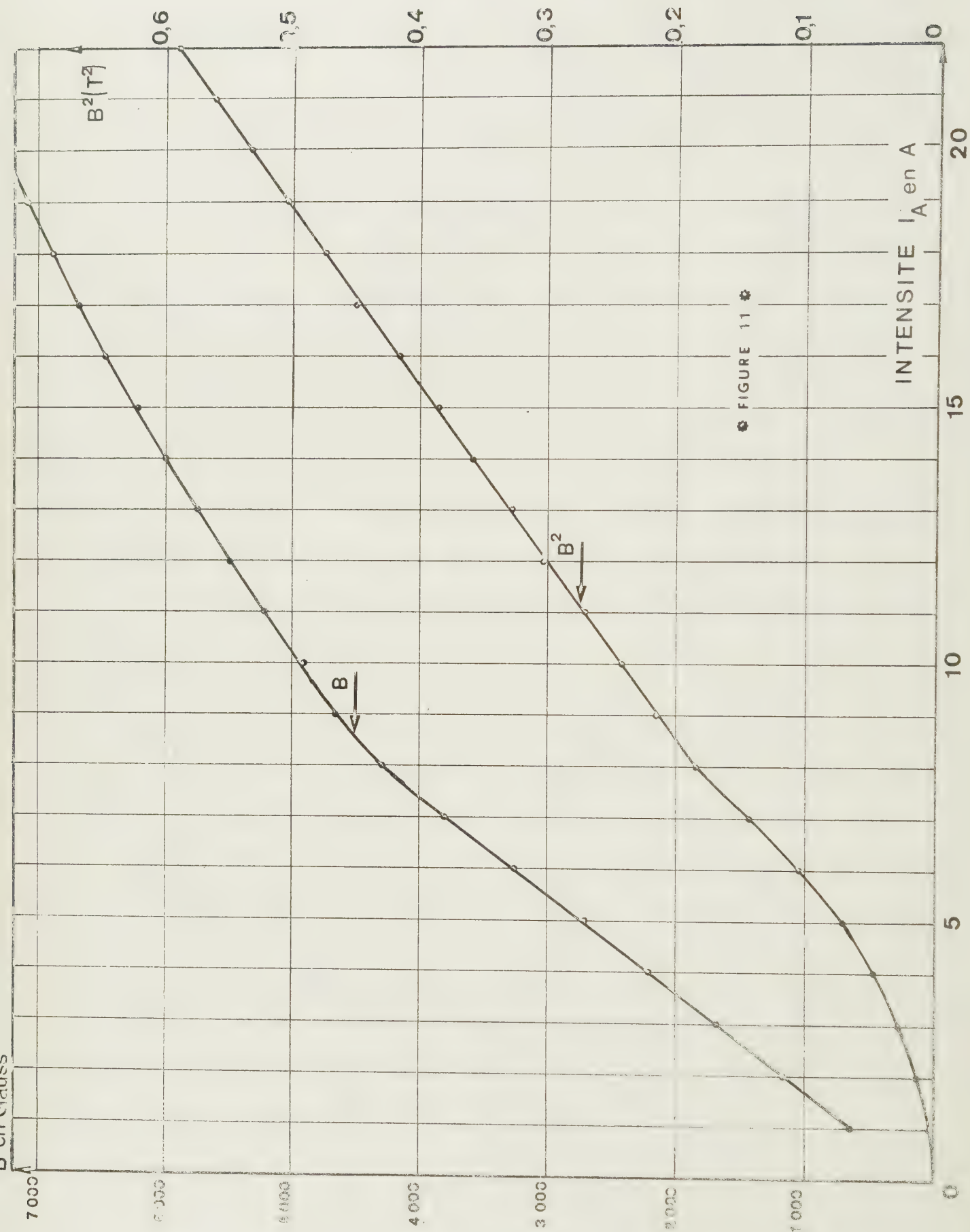
La séparation des isotopes 35 et 37 du Chlore, l'identification de particules de masses voisines, la mise en évidence d'ions deux fois chargés ne pouvaient se faire qu'avec une analyse magnétique précise ; il fallait, de plus, un champ magnétique très élevé. Dans ce but, nous avons adapté au banc d'essai, l'aimant utilisé sur l'accélérateur SAMES du laboratoire.

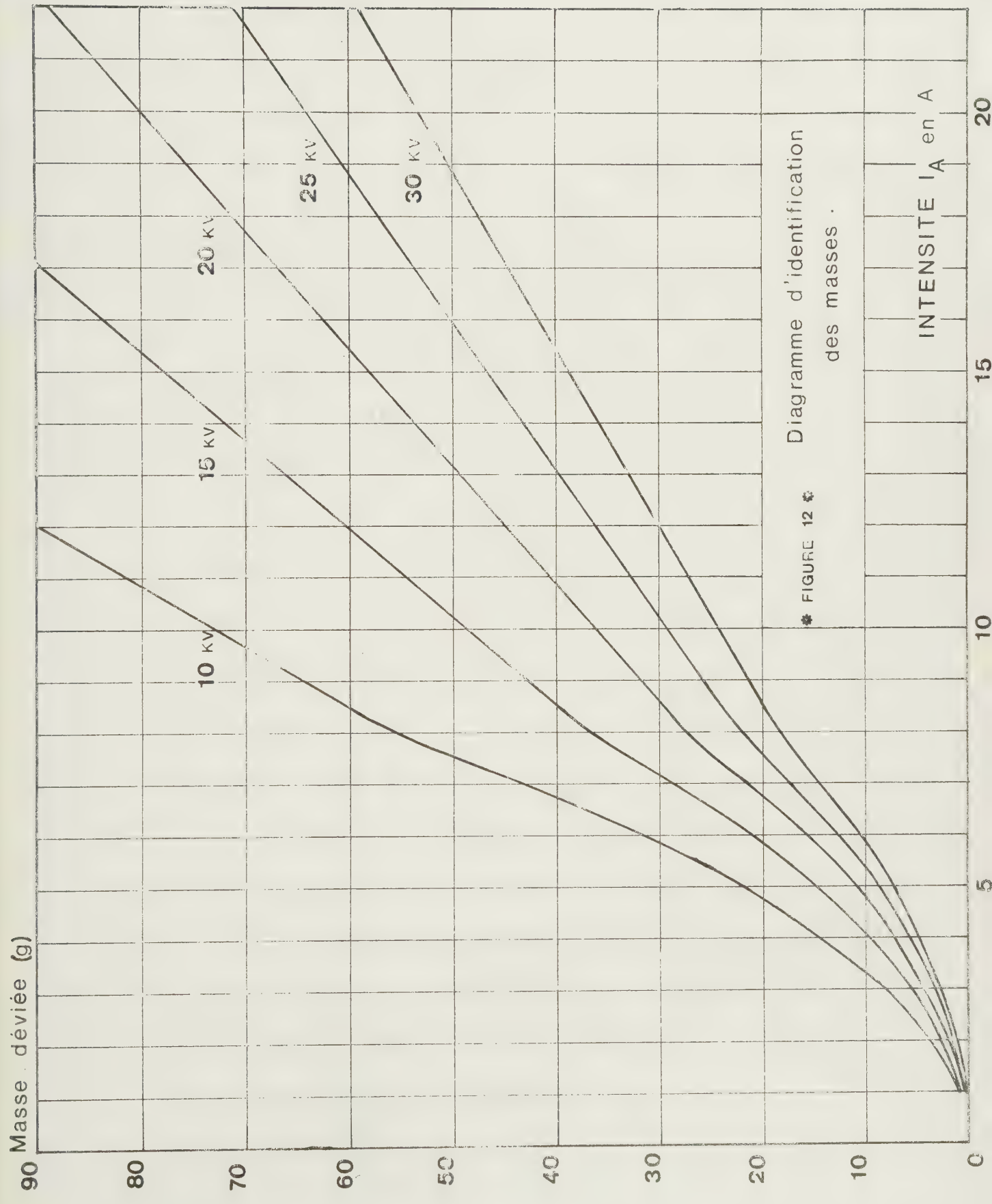
A l'entrée et à la sortie de la chambre d'analyse, nous avons placé des diaphragmes étroits en formes de fentes (largeur 2 mm, hauteur 10 mm). Un gaussmètre, muni d'une sonde à effet Hall, nous a permis d'étalonner l'électro-aimant en fonction du courant I_A débité par l'alimentation stabilisée (fig. 11).

Rappelons la relation donnant la masse déviée en fonction de l'induction magnétique B et de la tension d'accélération V :

$$m = \frac{R^2 e B^2}{2V}$$

Le rayon de courbure de l'aimant, pour la voie d'analyse à 60° , est $R = 0,250$ m. Sur la figure (11), nous avons tracé la courbe $B^2 = f(I_A)$. Les courbes $m = f(I_A)$ de la figure (12) en sont déduites. Elles permettent, par simple lecture, d'identifier





la masse en fonction du courant I_A , pour diverses tensions accélératrices. Remarquons la forme linéaire des tracés, au dessus de $I_A = 8A$. Dans cette partie, la détermination des masses est aisée. Par contre, le rapport $\Delta m / \Delta I_A$ n'est plus constant dans la zone incurvée, au dessous de 8 A. La précision est bien moins bonne. Une tension d'accélération élevée est requise pour obtenir une résolution suffisante.

I.V . 3 - SEPARATION ISOTOPIQUE. DISCUSSION DES RESULTATS

La figure (13) reproduit les spectres de masses obtenus pour trois courants de chauffage du four. La tension d'accélération commune pour ces enregistrements est 20 KV. La sensibilité des appareils de mesures est modifiée au cours des enregistrements.

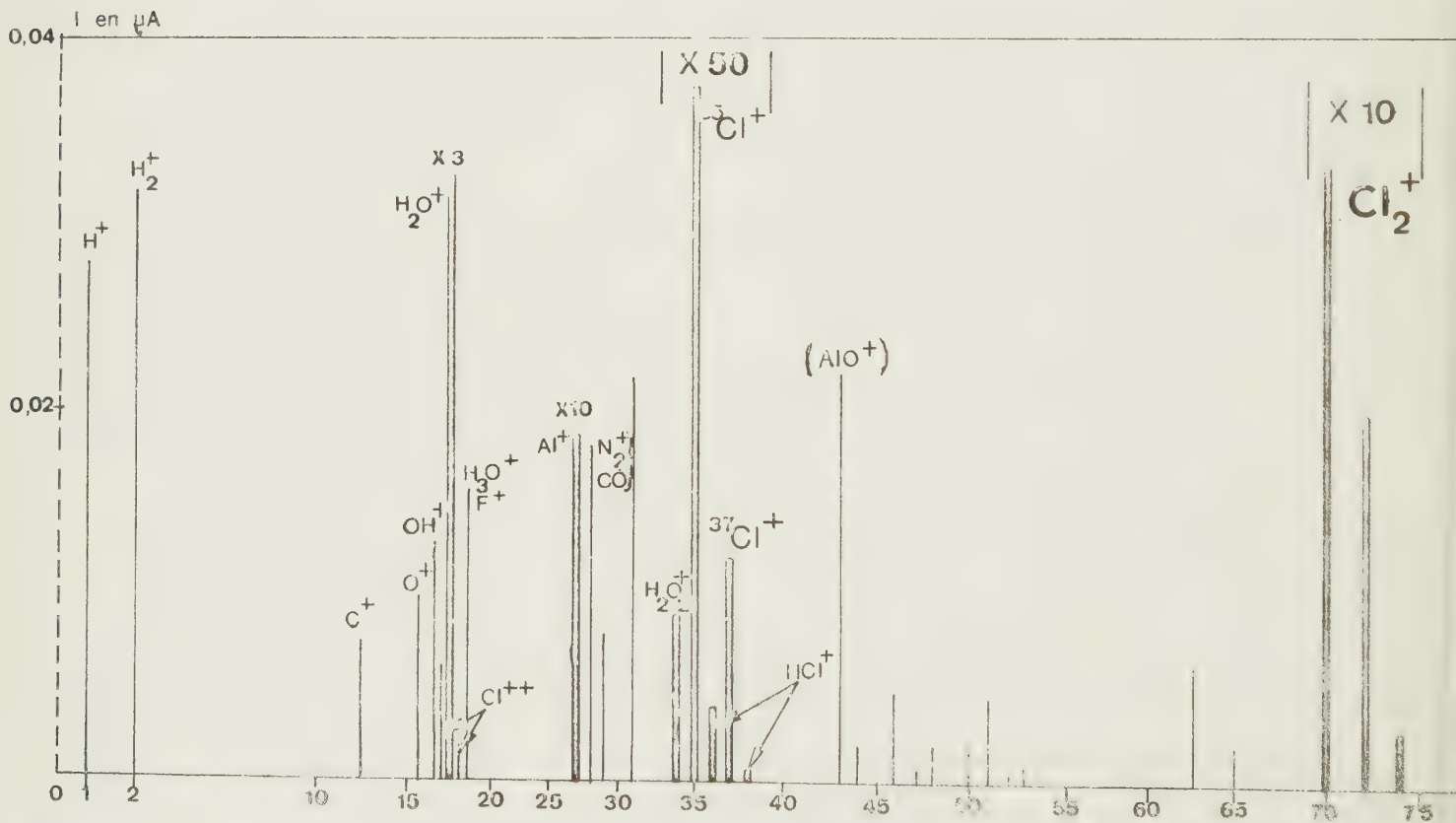


Figure 13a - SPECTRE DE MASSE AVEC $FeCl_3$

$I_{ch} = 60 A,$

$V_{HT} = 20 KV,$

$I_{total} = 5 \mu A$

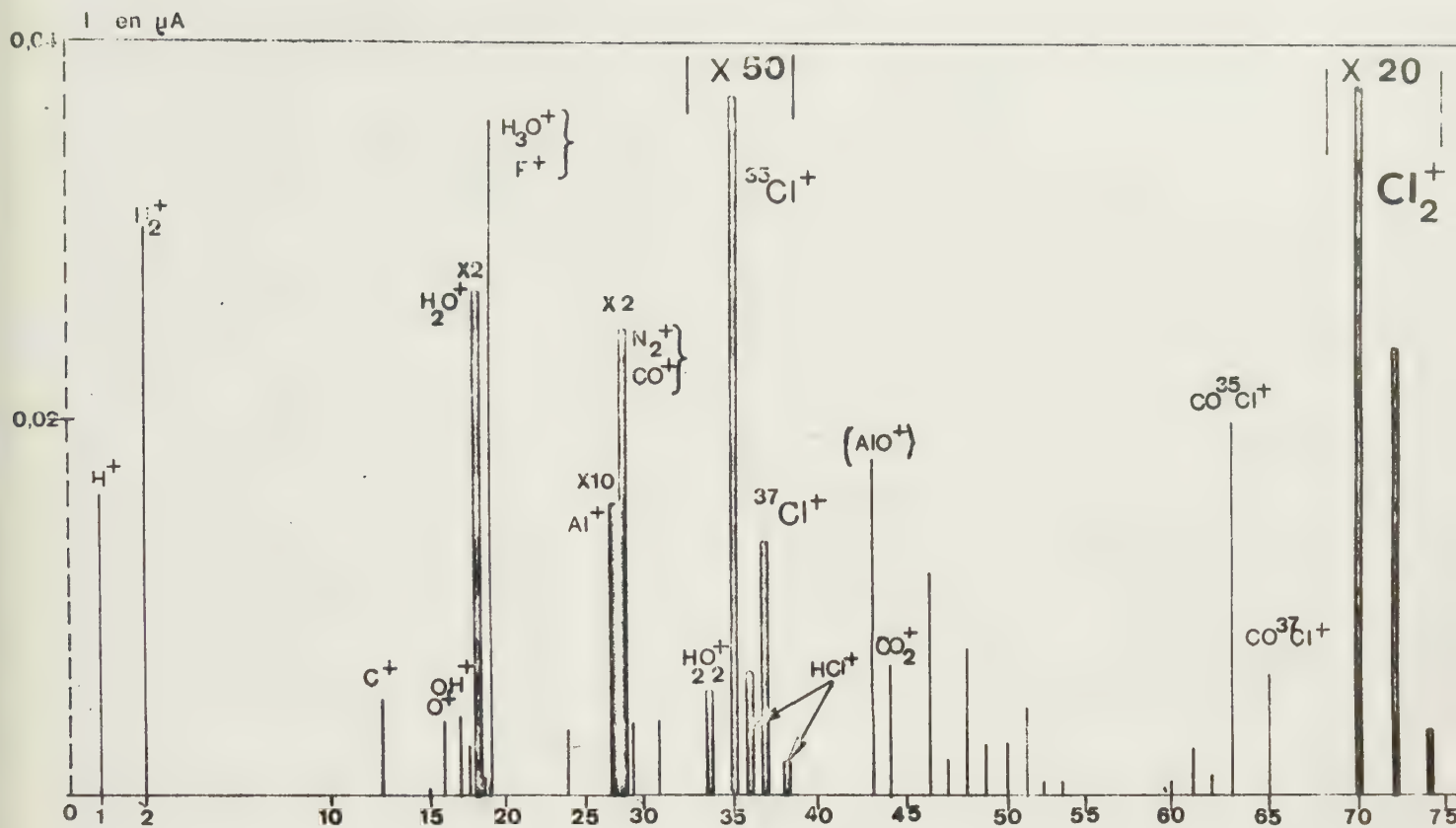


Figure 13b - SPECTRE DE MASSE AVEC $FeCl_3$

$I_{ch} = 70 A,$

$V_{HT} = 20 KV,$

$I_{total} = 4,8 \mu A$

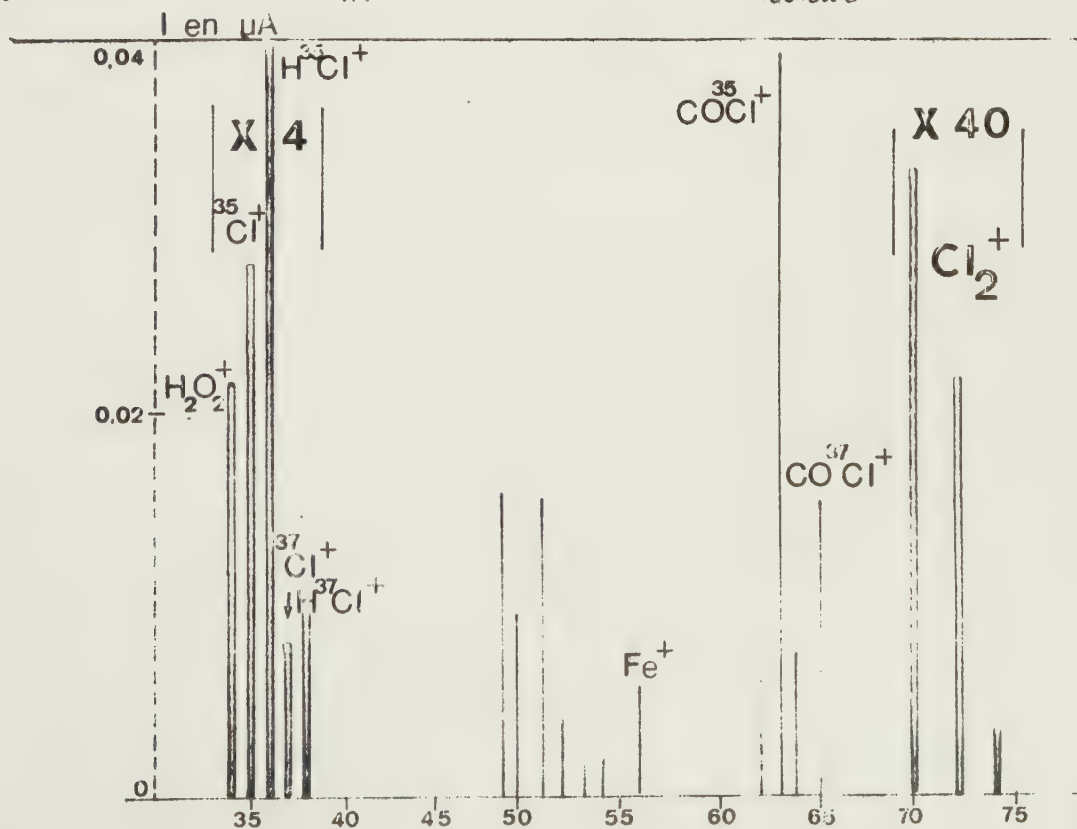


Figure 13c - SPECTRE DE MASSE AVEC $FeCl_3$

ANALYSE DES RESULTATS

L'utilisation de chlorure ferrique laissait prévoir une fraction non négligeable de molécules ionisés Cl_2^+ dans le faisceau. L'abondance relative de l'ion Cl^+ peut surprendre. Sous l'effet de l'impact électronique, la molécule FeCl_3 a de forte chance de se dissocier.

Sous vide, le déplacement d'équilibre a tendance à augmenter la pression et à favoriser la réaction $(\text{FeCl}_3)_2 \rightarrow 2\text{Fe} + 3\text{Cl}_2$. De plus, le potentiel de dissociation de la molécule de chlore est peu élevé (2,47 eV) ; il est donc normal d'obtenir une proportion importante d'ions Cl^+ . Nous le distinguons nettement sur les enregistrements pour les masses 35 et 37. L'abondance relative naturelle des isotopes est respectivement 75,4% et 24,6% ; l'expérience le confirme.

Il est donc normal d'observer trois pics pour la molécules Cl_2 , car il faut combiner les masses 35 et 37. Le tableau suivant permet de comparer les pourcentages calculés et expérimentaux obtenus à partir de trois enregistrements :

Molécules	Masses	Pourcentages			
		Calculés	expérimentaux		
			1	2	3
$^{35}\text{Cl}^{35}\text{Cl}$	70	56,9	57,3	57,5	57,4
$^{35}\text{Cl}^{37}\text{Cl}$	72	37,1	36,8	36,7	36,8
$^{37}\text{Cl}^{37}\text{Cl}$	74	6,0	5,9	5,8	5,9

Le rapport des masses 36 et 38 correspond au rapport isotopique du chlore. Il s'agit donc de l'ion moléculaire HCl^+ .

La masse 34 apparaît sur chaque spectre. Elle semble provenir de H_2O_2^+ . Elle a été observée par KOZLOV. et al. (1961) dans une décharge de vapeur de NaCl .

Les autres impuretés du faisceau ont une intensité très faible. Nous avons essayé de les identifier ; nous resterons cependant très réservés pour certaines d'entre elles.

C'est le cas de la masse 27 ; peut être est-ce l'aluminium arraché de l'extracteur . BASHKIN et al (1967) ont identifié spectroscopiquement des ions Al^+ et Fe^+ obtenus avec une source HF fonctionnant avec de l'argon. Les ions métalliques proviennent de l'érosion du canal d'extraction.

Les masses 1, 2, 12, 16, 17 et 18 ne peuvent provenir que de H^+ , H_2^+ , C^+ , O^+ , OH^+ , H_2O^+ . Nous voyons que le sel n'est pas totalement affranchi de l'eau, malgré le chauffage important et prolongé.

La masse 19 correspond à celle du fluor ou de H_3O^+ .

Nous remarquons sur les deux premiers spectres les masses 17,5 et 18,5 en quantité mineure. Il s'agit de $^{35}Cl^{++}$ et de $^{37}Cl^{++}$.

Entre les masses 43 et 54 apparaissent plusieurs pics. La masse 43 correspond peut être à AlO^+ . Nous obtenons certainement BO_2^+ (44). Les masses 51, 52, 53, 54 semblent provenir de $^{35}ClO^+$, $H^{35}ClO^+$, $^{37}ClO^+$, $H^{37}ClO^+$.

Nous pensons que les masses 63 et 65 répondent au composé chimique de formule $COCl^+$. Les abondances isotopiques sont dans le rapport de 1 à 3. Le cuivre possède deux isotopes de masse 63 et 65, dont les proportions quantitatives sont respectivement 69% et 31%. La provenance de ce métal serait difficile à expliquer.

Dans les deux premiers enregistrements, les courants de chauffage du four sont de 60 et 70 A. Le fer n'apparaît pas . Le dernier enregistrement, réalisé pour $I_{CH} = 75$ A, fait apparaître la masse 56 avec une intensité très faible (quelques nanoampères).

IV . 4 - CONCLUSION

L'utilisation de chlorure ferrique, dans la source, semble contre-indiquée en vue de l'obtention d'ions Fe^+ . Il serait, sans doute préférable d'utiliser FeCl_2 , en prévoyant un moyen de chauffage beaucoup plus intense. Quelques modifications, d'ordre technologique, sont donc nécessaires.

Parmi les composés chimiques du fer, il existe le fer pentacarbonyle : $\text{Fe}(\text{CO})_5$. C'est un liquide, dans les conditions normales, très volatile. Sa manipulation est délicate, car à l'état de vapeur, il se décompose partiellement ; il est nocif. Cette décomposition favorisée par l'action de la lumière, risque d'être fortement accélérée dans l'enceinte d'ionisation, portée à basse pression. Des essais mériteraient cependant d'être envisagés.

Au préalable, il serait intéressant de réaliser quelques expériences avec le silicium carbonyle, d'usage plus courant.

Cette étude nous a permis de remarquer le nombre et la complexité des phénomènes prenant naissance au niveau de la chambre d'ionisation. Elle montre qu'il est difficile de prévoir sans expérience.

L'intérêt de ce travail réside surtout dans l'obtention d'ions Cl^+ . Nous avons vu, dans le chapitre I deux méthodes classiques utilisées pour former un tel faisceau. Par notre méthode, nous avons obtenu aussi des faisceaux de chlore de grande intensité (60 - 70 μA).

La dimension de la largeur des diaphragmes d'entrée et de sortie de la chambre d'ionisation nous a permis d'obtenir, pour l'isotope 35 du chlore, une intensité utilisable par exemple dans les expériences de spectroscopie de faisceau (4 à 10 μA suivant l'énergie).

C H A P I T R E V

APPLICATION A L'ETUDE SPECTROSCOPIQUE D'UN FAISCEAU D'IONS Cl^+

V - 1. INTRODUCTION ET BIBLIOGRAPHIE

Lorsqu'un faisceau d'ions accélérés diffuse à travers une cible gazeuse, les collisions inélastiques portent les particules du gaz cible et les particules du faisceau dans des états excités. La désexcitation spontanée de ces états s'accompagne d'une émission de lumière.

Le travail qui est rapporté ci-après concerne l'étude du spectre optique émis lorsqu'un faisceau d'ions $^{35}\text{Cl}^+$ accéléré traverse une cible gazeuse d'hydrogène. L'identification des transitions observées a été réalisée par comparaison avec les tables de longueurs d'onde publiées par MOORE (1945 et 1949), STRIGANOV et SVENITSKII (1968), WIESE et al. (1969).

A ce jour, il semble que quelques expériences seulement aient été faites sur l'étude spectroscopique du chlore atomique ionisé par cible gazeuse ou par cibles solides, après accélération. Ainsi, S.BASHKIN et I.MARTINSON (1970) ont étudié, par la méthode de "Beam-foil spectroscopy", le spectre émis par $^{35}\text{Cl}^+$ accéléré à 1,5 MV, sur l'accélérateur VAN de GRAAFF de l'Université d'Arizona à Tucson. A cette énergie, les transitions de ClV, VI et VII sont prédominantes, les niveaux de ClII, ~~III~~ et IV n'étant préférentiellement excités qu'à plus basse énergie. La méthode de spectroscopie de faisceau par cible gazeuse ou par feuille de carbone permet d'étudier simplement les structures moléculaires et atomiques : voir par exemple, J.DESEQUELLES (1970).

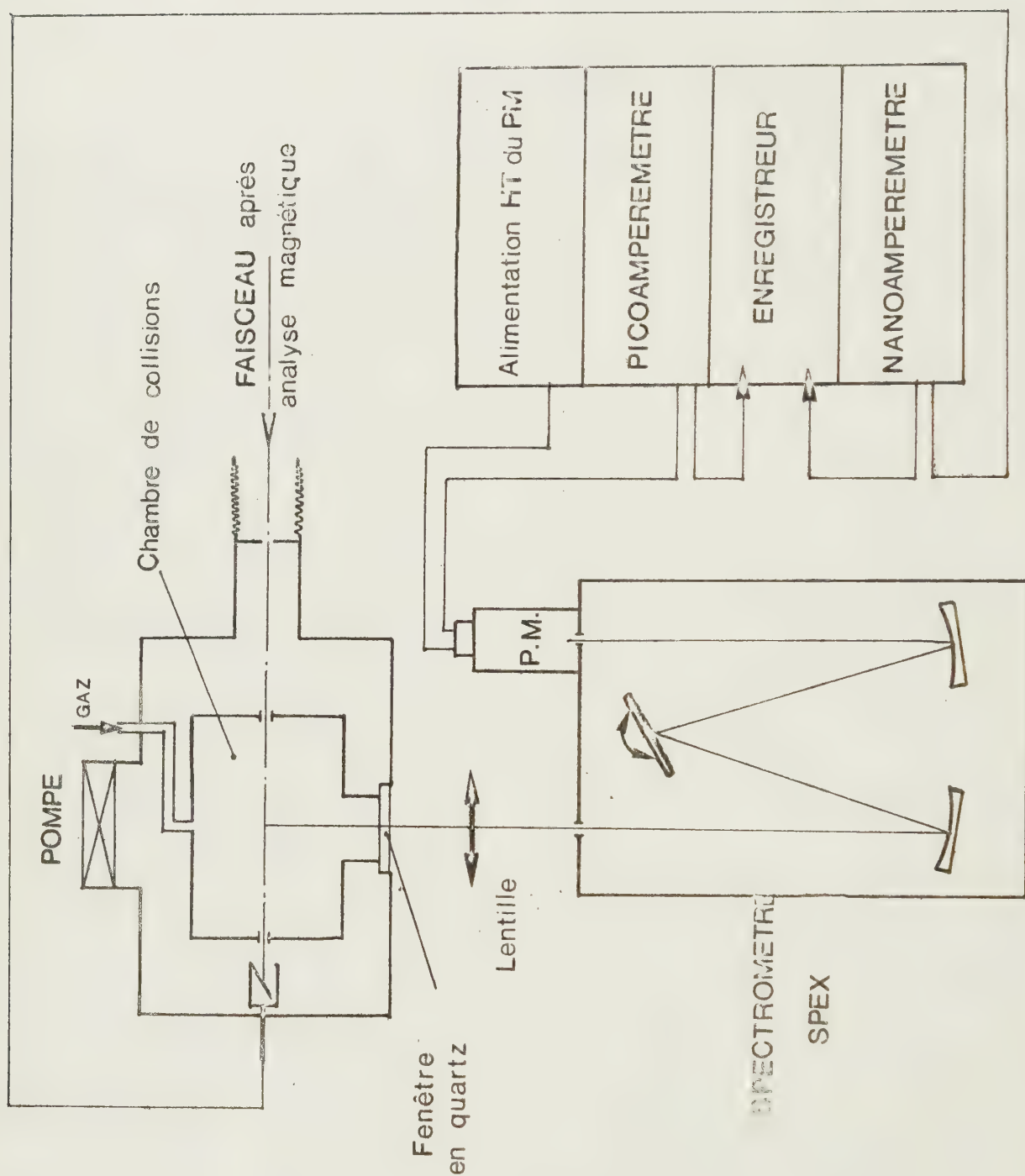


Figure 14 - DISPOSITIF EXPERIMENTAL

2. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

A - Chambre de collisions

La figure (14) représente le dispositif expérimental utilisé après l'analyse magnétique. Le faisceau traverse la chambre de collisions. Celle-ci a été décrite par G. DO CAO (1970). Sur une face latérale, la chambre est munie d'une voie commune pour la mesure de la pression et pour l'admission de gaz. Sur le côté opposé, un hublot de visée en quartz permet d'observer la lumière émise lorsque la longueur d'onde est supérieure à 2000 Å. Chacune des deux extrémités est fermée par un diaphragme de 5 mm d'ouverture.

Le choix du gaz cible: l'hydrogène, est dû au fait que le spectre émis (les raies de Balmer) est discret et ne se superpose pas aux radiations provenant du faisceau. Par ce moyen d'excitation, les spectres de bandes de la molécule H_2 n'apparaissent pas. Il est possible que l'utilisation d'un autre gaz permette d'exciter plus efficacement le faisceau.

B - Appareillage optique

La lumière émise, sous un certain angle solide, à travers le hublot de la chambre de collisions, est focalisée par une lentille de quartz sur la fente d'entrée d'un monochromateur SPEX 1700. Cet appareil, utilisé en spectromètre possède les caractéristiques suivantes :

Montage : Coudé - COLLIMÉ
Focale : 0,75 m - 2 lentilles sphériques de diamètre 0,12 m servant respectivement de collimateur et d'objectif.

Dispersion pour un réseau de 1200 g/mm : 10 Å/mm, sans
1. ... de la

Rapport d'ouverture : $f/6,8$

Limite : $\lambda(\text{\AA}) > 2000 \text{\AA}$

Plusieurs réseaux sont adaptables. Deux exemplaires (JOBIN & YVON et BAUSCH & LOMB), de dimensions $120 \times 120 \text{ mm}$ ont été employés. Tous deux possèdent 1200 t/mm . L'un est blazé à $5000 \text{\AA}$, l'autre à $2500 \text{\AA}$. Celui-ci a été utilisé pour les spectres enregistrés dans le visible, celui-là a servi à observer les spectres U.V.

Le signal lumineux est transformé en signal électrique par un photomultiplicateur du type E.M.I., caractérisé par :

- une cathode Cs - Sb
- une fenêtre de quartz
- son domaine de sensibilité : $1900 \text{ à } 6000 \text{\AA}$
- son nombre de dynodes = 14

Dans la région du spectre visible, afin d'analyser uniquement le spectre du premier ordre, un filtre KODAK WRATTEN 2 A (W 2 A) a été placé devant la fente d'entrée du spectromètre. Ce filtre ne laisse passer que les radiations de longueur d'onde supérieure à $4200 \text{\AA}$.

C) Dispositif enregistreur

Le photocourant, mesuré à l'aide d'un picoampèremètre LEMOUZY, est enregistré sur l'une des voies d'un enregistreur HEWLETT PACKARD (modèle 7100 BM). L'autre voie peut enregistrer l'intensité du faisceau d'ions recueilli dans le cylindre de Faraday disposé à la sortie de la chambre de collision. Un stylet auxiliaire de l'enregistreur fournit une échelle de longueur d'onde, par des tops déclanchés tous les $50 \text{\AA}$, par le dispositif d'entraînement du réseau, à vitesse variable.

V . 3 - CARACTERISTIQUES DE LA SOURCE SPECTROSCOPIQUE

Le moyen d'excitation employé produit un dard lumineux visible sur plusieurs centimètres. Il constitue une source spectroscopique très particulière. Ses propriétés essentielles sont les suivantes :

A P Pureté chimique

L'analyse de masse permet d'isoler l'isotope le plus riche de l'atome de chlore. Le faisceau est donc très pur. Le vide résiduel dans la chambre d'ionisation est très bas (de l'ordre de 10^{-6} torr). L'hydrogène de la cible de qualité N 55 (pur à 99,9995 %) ne donne que des raies.

B - Absence de processus secondaires

La probabilité des chocs secondaires entre les particules incidentes et celles de la cible est minime. En effet, la densité des ions du faisceau (5×10^6 part/cm³ pour une intensité de 6pA), et celle des particules de la cible gazeuse (3×10^{13} part/cm³) sont très faibles ; la longueur du libre parcours moyen est de l'ordre de 10 cm.

Les effets de recombinaisons et de chocs sur les parois sont absents.

C - L'énergie des ions Cl⁺ est bien déterminée

Les états de charge des atomes excités varient avec l'énergie du faisceau. Dans le cas de notre montage, le faisceau est presque monocinétique. La dispersion d'énergie est due à la source haute-fréquence et dépend du taux de régulation des alimentations stabilisées utilisées. La mesure des largeurs de raies, obtenus dans les spectres des masses, a permis d'évaluer la dispersion totale du faisceau à 80 eV.

D - L'élargissement Doppler

L'identification des transitions observées dans les spectres optiques est quelquefois rendu difficile, à cause de la superposition de plusieurs raies voisines. La largeur de la raie dépend du réglage du monochromateur et de l'élargissement Doppler. Celui-ci est inférieur à 1 Å pour $\lambda = 2000$ Å, lorsque la tension d'accélération est 30 KV.

III. 4. CHAT DES SPECTRES OBTENUS

De nombreux spectres du chlore ont été enregistrés pour des énergies comprises entre 10 KeV et 30 KeV et pour diverses pressions dans la chambre de collisions.

Les figures 15, 16, 17 représentent trois portions de spectres obtenues dans des conditions expérimentales différentes.

A - Identification des transitions

Pour les spectres reproduits, la largeur des fentes d'entrée et de sortie (500 Å) est réglée pour donner une largeur de 5 Å. La mesure de la largeur et de l'intensité des raies est faite de 5 Å. Deux raies très voisines peuvent être confondues, mais on peut les séparer en augmentant la pression.

Les transitions observées et identifiées sont cataloguées dans les tableaux 1, 2, 3. Une liste des raies d'hydrogène ont ainsi répertoriées. Le spectre est très riche en raies de Cl II. Quelques raies semblent provenir de Cl I, mais leurs intensités sont faibles. L'énergie des ions incidents nous n'avons pas observé de raies provenant de Cl. Toutefois, les intensités indiquées dans les tables de longueurs d'onde sont faibles en ce qui concerne Cl III dans le régime de la raie λ_{max} .

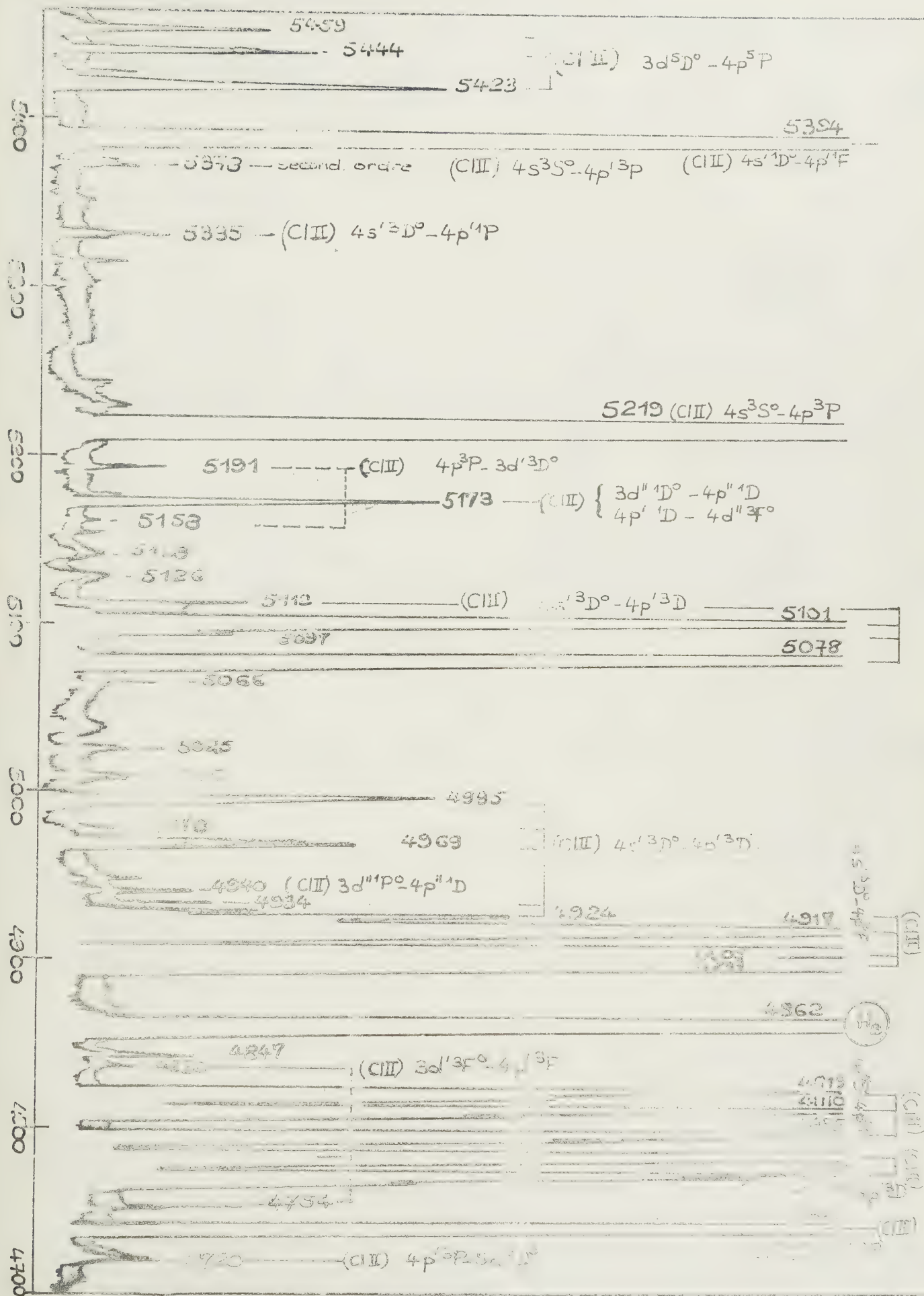


Figure 14. SPECTRE DU CHLORURE DE KIO₃ À 4200 Å

Figure 15 - SPECIFIC INFLUENCE OF 3600 Å AND 3800 Å

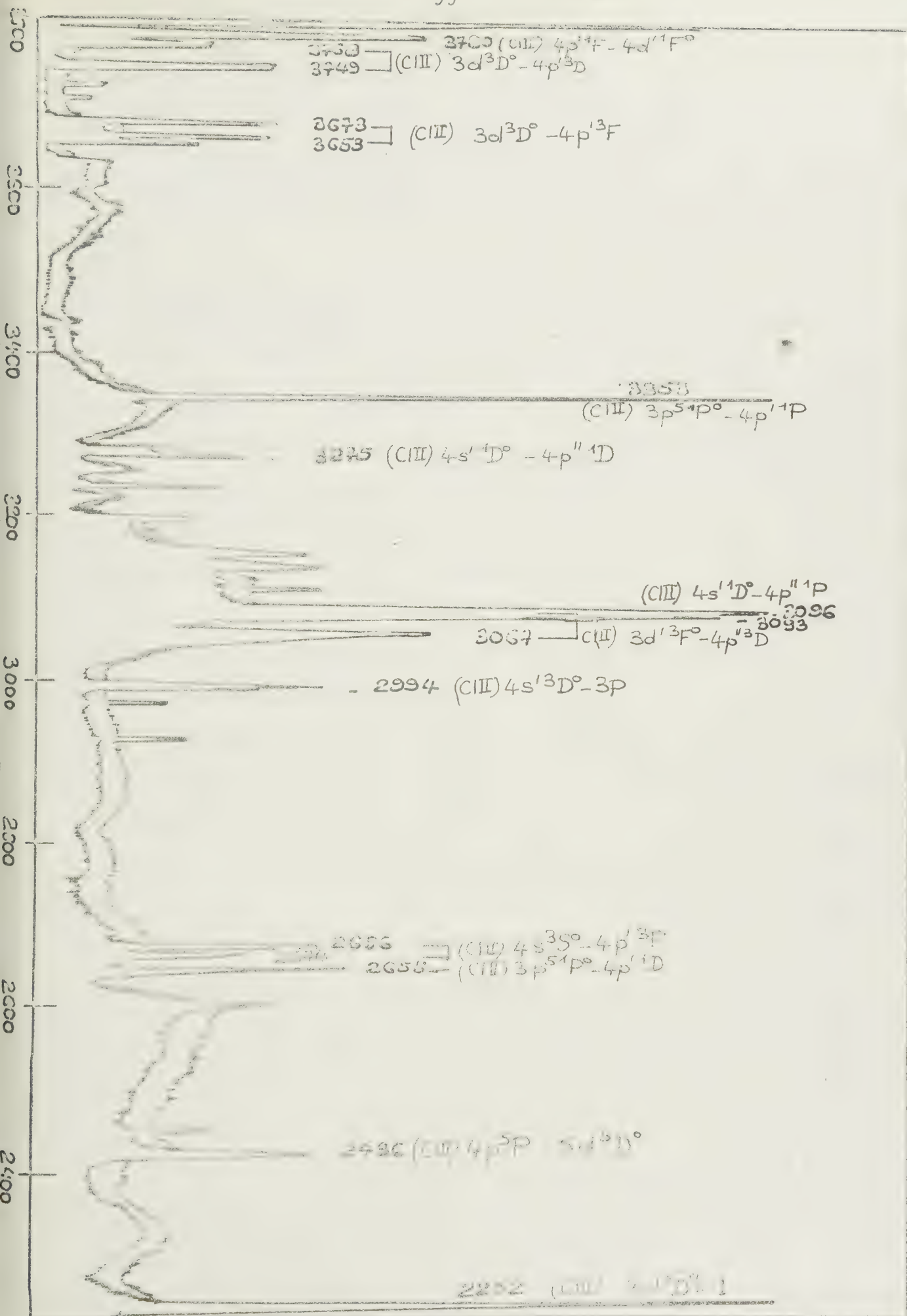


Figure 16 - SPECTRE DU CHLORE DANS L'U.V.

Le tableau 4 rassemble les raies de Balmer émises par la cible. L'identification des raies notées H_9 , H_{10} , H_{11} et H_{12} est très douteuse, à cause des superpositions possibles avec des transitions de Cl II.

Dans chaque tableau, une colonne est réservée pour l'indication d'une valeur estimée (A à E) de l'intensité de chaque raie. Les transitions les plus intenses sont notées A. Cette estimation est faite, compte non tenu de la sensibilité spectrale du photomultiplicateur. Elle permet la comparaison entre des raies spectrales voisines les unes des autres. Dans la dernière colonne, nous avons noté les superpositions possibles, en général dûes au chlore I ou II.

Nous ne constatons pas de raies provenant d'impuretés si ce n'est pour $\lambda = 3918 \text{ \AA}$. Pour cette longueur d'onde, l'arête de la bande de N_2^+ ($3914 \text{ \AA}$) ($1n - 00$, très intense dans les spectres de l'azote) se superpose au triplet $4p, ^3F - 4d, ^3F^o$. Il s'agit certainement de N_2^+ , car le multiplet de Cl II ne donne que des raies notées E (très faible) tandis que la raie observée est notée D (faible).

Le diaphragme d'entrée de la chambre de collision étant en cuivre, nous avons cherché à distinguer les raies excessivement intenses du premier spectre du cuivre, mais sans y parvenir.

Tableau n° 2.

RAIES OBSERVEES DANS Cl II

$\lambda(\text{\AA})$ lue	$\lambda(\text{\AA})$ vraie	Identification	I	Remarques
<u>SINGULETS</u>				
5394	5392,12	$4s, ^1D^{\circ} - 4p, ^1F$	A	
5173	5175,85	$3d, ^1D^{\circ} - 4p, ^1D$	C	(ClI) 5175,85 $(4p, ^1D - 4d, ^3P)$ (ClI) 5175,85 $(4p, ^1D - 3d, ^3D)$
4940	4943,24	$3d, ^1P^{\circ} - 4p, ^1D$	E	
4741	4740,40	$3d, ^1D^{\circ} - 4p, ^1P$	A	(ClI) 4740,40 $(4s, ^2P - 3p, ^4D^{\circ})$
4400	4399,14	$4s, ^1P^{\circ} - 4p, ^1P$	E	
4135	4132,48	$4s, ^1D^{\circ} - 4p, ^1D$	A	
3843	3843,26	$3d, ^1P^{\circ} - 4p, ^1S$	C	(ClI) 3845,04 a $(4p, ^5P - 5d, ^5D)$ 3845,04
3780	3781,23	$4p, ^1F - 4d, ^1D^{\circ}$	D	
3353	3353,39	$3s3p, ^5P^{\circ} - 4p, ^1P$	C	
3277	3276,81	$4s, ^1D^{\circ} - 4p, ^1D$	E	
3096	3096,72	$4s, ^1D^{\circ} - 4p, ^1P$	C	(ClI) 3092,22 $(3d, ^3F^{\circ} - 4p, ^3D)$
2658	2658,74	$3s3p, ^5P^{\circ} - 4p, ^1D$	D	
<u>TRIPLETS</u>				
5219	{ 5221,34 5217,93	$4s, ^3S^{\circ} - 4p, ^3P$	A	
{ 5191 5173 5158	{ 5193,03 à 5158,79	$4p, ^4P - 3d, ^3D^{\circ}$	E C E	(ClI) 5175,85 $\left\{ \begin{array}{l} 3d, ^1D^{\circ} - 4p, ^1D \\ 4p, ^1D - 4d, ^3P \end{array} \right.$
{ 5112 5101 5078 5066	{ 5113,36 à 5068,10	$4s, ^3D^{\circ} - 4p, ^3D$	D B E A	(ClI) 5099,80 $(4s, ^2P - 4p, ^2P^{\circ})$ (faible)
{ 4995 4969 4934	{ 4995,52 à 	$3d, ^3F^{\circ} - 4p, ^3D$	C D E	(ClI) 4972,14 $(4s, ^3D^{\circ} - 4p, ^3D)$

$\left\{ \begin{array}{l} 4924 \\ 4917 \\ 4905 \\ 4897 \end{array} \right\}$	$\left\{ \begin{array}{l} 4922,14 \\ \\ \\ 4896,77 \end{array} \right\}$	$4s, ^3D^{\circ} - 4p, ^3F$	C	
	à		B	(C1II) 4924,28 ($3d, ^3F^{\circ} - 4p, ^3D$)
			A	
			A	
4841	4842,44	$3d, ^3D^{\circ} - 4p, ^3P$	E	
$\left\{ \begin{array}{l} 4836 \\ 4819 \\ 4782 \\ 4754 \end{array} \right\}$	$\left\{ \begin{array}{l} 4836,79 \\ \\ \\ 4755,64 \end{array} \right\}$	$3d, ^3F^{\circ} - 4p, ^3F$	E	
	à		B	(C1II) 4819,46 ($4s, ^5S^{\circ} - 4p, ^5P$)
			A	(C1II) 4781,32 ($4s, ^3P^{\circ} - 4p, ^3D$)
			D	
$\left\{ \begin{array}{l} 4782 \\ 4769 \end{array} \right\}$	$\left\{ \begin{array}{l} 4785,44 \\ 4768,68 \end{array} \right\}$	$4s, ^3P^{\circ} - 4p, ^3D$	A	(C1II) 4781,82 ($4d, ^3F^{\circ} - 4p, ^3F$)
			B	
4720	4721,43	$4p, ^3P - 5d, ^3D^{\circ}$	E	
4585	4585,03	$4p, ^3P - 3d, ^3S^{\circ}$	E	(C1II) 4584,28 non classée
4571	$\left\{ \begin{array}{l} 4572,13 \\ 4569,42 \end{array} \right\}$	$4p, ^3P - 5s, ^3S^{\circ}$	E	noté intense dans la classification
$\left\{ \begin{array}{l} 4537 \\ 4502 \\ 4490 \\ 4476 \end{array} \right\}$	$\left\{ \begin{array}{l} 4536,78 \\ 4475,28 \\ \\ \end{array} \right\}$	$4s, ^3P^{\circ} - 3P$	E	
			D	(C1II) 2253,16 ($3d, ^3D^{\circ} - 1$) 2 ^e ordre
			C	2250,96 ($4s, ^4P - 5p, ^4D^{\circ}$)
			D	4475,31
$\left\{ \begin{array}{l} 4373 \\ 4309 \\ 4261 \end{array} \right\}$	$\left\{ \begin{array}{l} 4372,19 \\ \\ 4261,22 \end{array} \right\}$	$3d, ^3D^{\circ} - 1$	D*	
	à		C	
			D	
$\left\{ \begin{array}{l} 4344 \\ 4309 \\ 4293 \end{array} \right\}$	$\left\{ \begin{array}{l} 4343,62 \\ \\ 4291,76 \end{array} \right\}$	$4s, ^3D^{\circ} - 4p, ^3P$	A	
	à		C	(C1II) 4309,06 ($3d, ^3D^{\circ} - 1$)
			D	
$\left\{ \begin{array}{l} 4277 \\ 4261 \end{array} \right\}$	$\left\{ \begin{array}{l} 4276,51 \\ 4261,22 \end{array} \right\}$	$4p, ^3F - 5s, ^3D^{\circ}$	D	
			D	(C1II) 4259,52 ($3d, ^3D^{\circ} - 1$)
				$4s, ^3P^{\circ} - 4p, ^1P$
$\left\{ \begin{array}{l} 4208 \\ 4194 \\ 4188 \end{array} \right\}$	$\left\{ \begin{array}{l} 4208,03 \\ \\ 4185,61 \end{array} \right\}$	$4s, ^3P^{\circ} - 4p, ^3P$	B	
	à		E	(C1I) 4209,68 ($4s, ^4P - 5p, ^2D^{\circ}$) (faible)
			E	
3991	3990,19	$4p, ^3P - 4d, ^3D^{\circ}$	E	(C1III) 3991,50 ($3d, ^4P - 4p, ^4P^{\circ}$) (faible)
$\left\{ \begin{array}{l} 3918 \\ 3912 \\ 3906 \end{array} \right\}$	$\left\{ \begin{array}{l} 3917,57 \\ \\ 3902,84 \end{array} \right\}$	$4p, ^3F - 4d, ^3F^{\circ}$	D	Certainement N_2^+ 1n - 00
	à		E	3914 Å (superposition)
			E	
3871	3868,62	$4p, ^3D - 4d, ^3F^{\circ}$	D	

3834	{ 3833,40	$4p'^3F - 4d'^3G^{\circ}$	C	H_9 3835,39
3830	{ à		C	
3821	{ 3820,25		C	(ClII) 3818,40 ($4p'^3D - 4d'^3F^{\circ}$)
3821	{ 3818,40	$4p'^3D - 4d'^3F^{\circ}$	C	(ClII) 3820,25 ($4p'^3F - 4d'^3G^{\circ}$)
3810	{ à		D	
3807	{ 3798,80		D	
3799			D	H_{10} 3797,90
3768	{ 3774,25	$3d'^3D^{\circ} - 4p'^3D$	E	H_{11} 3770,63
3750	{ 3748,46	(intensités faibles)	E	H_{12} 3750,15 (ClIII) 3748,81 ($4s'^2P - 4p'^2D^{\circ}$) ?
3673	{ 3673,83	$3d'^3D^{\circ} - 4p'^3F$	E	(douteux)
3653	{ 3650,13		E	
3092	{ 3092,22	$3d''^3F^{\circ} - 4p''^3D$	C	(il manque la raie 3058,00 de
3070	{ 3058,00		D	même intensité que la raie 3071,35)
2995	2996,63	$4s'^3D^{\circ} - 3P$	E	
2687	{ 2688,04	$4s'^3S^{\circ} - 4p'^3P$	E	
2674	{ 2672,19		E	
2252	{ 2253,16	$3d'^3D^{\circ} - 1$	C	
	{ 2250,96			

QUINTUPLETS

5459	{ 5457,47	$3d'^5D^{\circ} - 4p'^5P$	D	
5444	{ à		D	
5423	{ 5423,25		C	
4818	{ 4819,46	$4s'^5S^{\circ} - 4p'^5P$	B	(ClII) 4819,79 ($4s''^3P^{\circ} - 4p''^3D$)
4810	{ à		B	
4795	{ 4794,54		A	
4254	{ 4253,51	$4p'^5P - 5s'^5S^{\circ}$	D	
4241	{ à		E	
4235	{ 4234,09		D	
3864	{ 3861,40	$4p'^5P - 4d'^5D^{\circ}$	C	
3854	{ à		C	
3847	{ 3845,42		C	(ClII) 4843,26 ($3d''^1P^{\circ} - 4p''^1S$)
2436	2434,10	$4p'^5P - 5d'^5D^{\circ}$	E	

INTERCOMBINAISONS

5788	5790,50	$4s'^1D^{\circ} - 4p'^3D$	E	
------	---------	---------------------------	---	--

Tableau n° 3.

RAIES OBSERVEES DANS Cl I

$\lambda(\text{\AA})$ lue	$\lambda(\text{\AA})$ vraie	Identification	I	Remarques
<u>Doublets</u>				
{ 5101	{ 5099,80	$4s^2P - 4p'^2P^o$	B	(ClII) 5099,30 ($4s'^3D^o - 4p'$
{ 4978	{ 4978,62		E	
{ 4659	{ 4661,22	$4s^2P - 5p^2P^o$	D	
{ 4601	{ à		E	(ClII) 4475,28 ($4s''^3P^o - 3p$
{ 4527	{		D	(ClI) 4475,31 ($4s^4P - 5p^4D^o$
{ 4476	{ 4469,37		D	
4624	4623,96	$4s^2P - 4p'^2D^o$	D	

Quadruplets

{ 4476	{ 4475,31	$4s^4P - 5p^4D^o$	D	(ClII) 4475,28 ($4s''^3P^o - 3p$
{ 4391	{ à		D	
{ 4325	{ 4323,25	$4s^4P - 5p^4S^o$	E	
{ 4226	{ 4226,44		D	
{ 4208	{ 4209,68		B	(ClII) 4208,03 ($4s''^3P^o - 4p''^3P$

Intercombinaisons

{ 4741	{ 4740,71	$4s^4P - 5p^4D^o$	E	(ClII) 4740,40 ($3d''^1D^o - 4p''^1P$
{ 4692	{ 4691,53		E	

Non classée

5768	{ 5799,88		C	
------	-----------	--	---	--

Tableau n° 4

RAIES DE BALMER EMISES PAR LA CIBLE

4862	4861,33	H _{β}	A	
4344	4340,47	H _{γ}	A	
4103	4101,74	H _{δ}	C	
3372	3970,07	H _{ϵ}	E	
3888	3889,05	H _{δ}	E	
3834	3835,39	H _{δ}	C	(ClII) $4p'^3F - 4d'^3G^o$ 3833,40
3799	3797,90	H ₁₀	D	(ClII) 3798,80 $4p'^3D - 4d'^3F^o$
				3763,43 & 3767,57
3768	3770,63	H ₁₁	E	(ClII) $3d^3D^o - 4p'^3D$

B) Transitions dans Cl II

KEISS et DE BRUIN (1939) ont révisé et étendu, à partir de résultats antérieurs et de leurs propres expériences, le second spectre du chlore et ont établi sa structure. Les raies les plus intenses sont dues, en général, à des transitions entre niveaux singulets, triplets ou quintuplets de même terme parent (Tableau 2).

Deux multiplets classés dans les triplets (4372 - 61) et (2252 - 50) aboutissent sur des états notés $3d^3D^o$ et $3d^3D^o$. L'état supérieur n'est pas exactement connu et a été noté par CH. MOORE. En effet, d'après KEISS et al (1939), la structure fine des multiplets n'est pas classique et semble être attribuable à une transition, peu commune, à deux électrons, à partir de la configuration $3s 3p^4 4s$, où un électron s de l'état fondamental de Cl I est déplacé sur le niveau $4s$.

Sur un diagramme de Grotrian modifié, nous avons reproduit uniquement les raies de Cl II vues.

[ns", np", nd"... correspondent respectivement]
Les niveaux ns, np, nd..., ns', np', nd'... aux trois états fondamentaux de Cl III ($4S^o_{3/2}$, $^2D^o_{3/2}$ ou $5/2$ et $^2P^o_{1/2}$ ou $3/2$) appelés termes parents. Les niveaux supérieurs et inférieurs des transitions observées ont essentiellement pour nombres quantiques principaux $n_2 = n_1 = 4$ et $n_2 = 4$, $n_1 = 3$ lorsqu'il s'agit, pour l'état inférieur d'un terme D ou F. Quelques raies seulement proviennent des transitions de $n_2 = 5$ à $n_1 = 4$.

Quelques raies faibles, sont dues à des intercombinaisons entre singulets et triplets (fin du tableau 2). Les transitions entre niveaux de termes parents différents sont également observées (par exemple les raies 3353, 3097 et 2659 Å. pour les singulets). Ces raies sont en général moyennes ou faibles.

Il manque évidemment sur ce diagramme les transitions

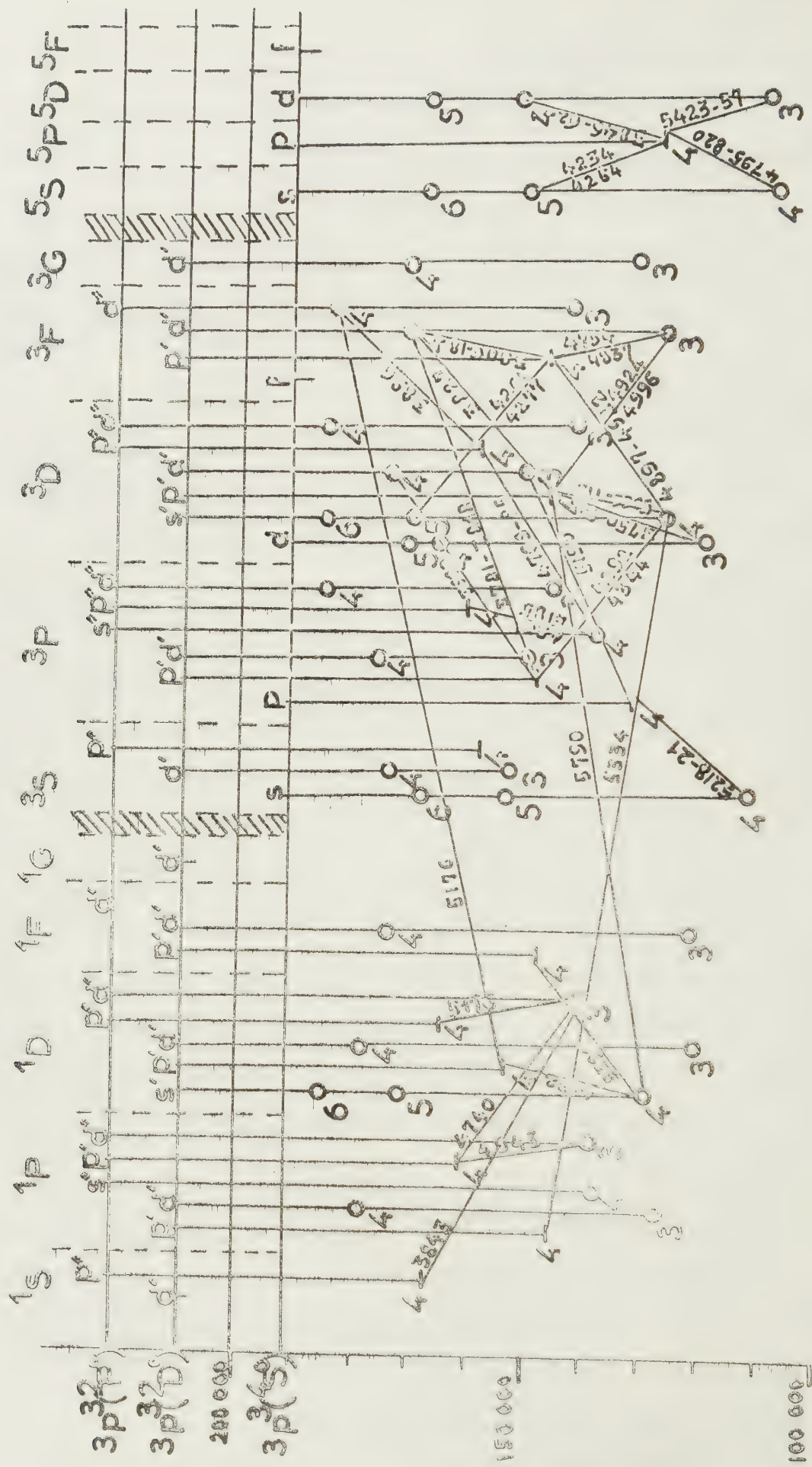


Figure 18 - DIAGRAMME DE CLII

$3d''^3D^o - 1$ et $3d^3D^o - 1$, ainsi que les transitions $4s''^3P^o - 3P$ et $4s'^3D^o - 3P$ (4537 et 2997 Å). Le terme supérieur, est un terme du triplet, mais mal défini, dans ce cas.

V . 5 -DISCUSSION DES RESULTATS

Bien que quelques raies soient attribuées à Cl I, nous n'avons pas suffisamment de données sur ce spectre pour en faire une étude, même succincte. En effet, comme le montre le tableau 3, les superpositions possibles (avec Cl II surtout) sont nombreuses et les intensités des raies vues sont, en général, très faibles. Il serait intéressant de savoir pourquoi ce premier spectre du chlore n'est pas observé. Pour cela, il est nécessaire d'avoir quelques renseignements, plus qualitatifs que quantitatifs, sur les réactions d'échange de charge et d'excitation qui prennent naissance dans la cible gazeuse. Ces renseignements peuvent nous être donnés par la théorie adiabatique de MASSEY (HASTED, 1964).

Cette théorie montre que dans une réaction de transfert de charge du type :



efficace, passe pour un maximum, lorsque la durée de la transition $= \frac{h}{\Delta E}$, est égale à la durée de collision $\frac{a}{v}$.

a est le paramètre adiabatique. Sa grandeur est du même ordre que la dimension de l'atome. De nombreuses expériences ont montré que a est sensiblement égal à 7 Å. Pour les réactions avec des particules lourdes, l'application du critère adiabatique est souvent plus délicate qu'avec des particules légères, car les systèmes atomiques sont plus complexes. Cependant, les renseignements apportés permettent d'éviter les déductions fausses venant d'expériences incomplètes.

D'après ce critère la section efficace est maximum lorsque la durée de la transition est égale à la durée du choc,

soit pour une vitesse : $v_m = a \left| \frac{\Delta E}{h} \right|$

Numériquement : $v_m = 1,7 \times 10^5 \frac{|\Delta E|}{\text{eV}}$
m/s

Si $v \ll \frac{a|\Delta E|}{h}$, la probabilité pour qu'une transition ait lieu reste faible. La gamme de vitesse ou d'énergie correspondante est appelée région adiabatique. La limite supérieure est v_m .

Pour les vitesses supérieures à v_m , la section efficace décroît plus ou moins rapidement.

Les vitesses d'impact, pour les ions Cl^+ sont données par :

$$v = 2,35 \cdot 10^5 \frac{V^{1/2}}{10^4} \text{ (volts)}$$

m/s

Pour la tension accélératrice de 30 KV, la vitesse des particules du faisceau est 4×10^5 m/s.

Considérons alors différentes réactions dans la cible :



Potentiel d'ionisation de Cl : 13,01 eV

Potentiel d'ionisation de H_2 : 15,43 eV

$$|\Delta E| = 2,42 \text{ eV}$$

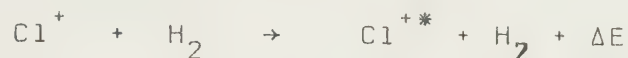
$$\text{alors } v_m = 4,1 \times 10^5 \text{ m/s}$$

La section efficace de cette réaction est maximum à 30 KV. Pourtant, nous n'avons pas constaté de bandes émises par H_2^+ sur nos spectres. Ceci peut être expliqué par le fait que le potentiel de dissociation de la molécule ionisée H_2^+ est faible (0,649 eV). Comme nous observons les raies de l'hydrogène atomique ($\text{H}\beta$, $\text{H}\gamma$, $\text{H}\delta$) avec une intensité importante, nous pouvons supposer que la réaction (A) donne naissance à la réaction d'ionisation dissociatrice de la molécule d'hydrogène.

La cible contiendrait alors une fraction importante

d'hydrogène neutre.

B) Le critère adiabatique reste applicable dans le cas de l'excitation. Soit alors le choc entre Cl^+ et H_2 , provoquant l'ionisation de Cl^+ .



Les termes spectraux de Cl II pour $n = 3, 4$ ou 5 correspondent à des nombres d'onde compris entre 120 000 et 170 000 cm^{-1} pour la plupart.

Envisageons le cas de la transition $4s\ ^3\text{S}^\circ - 4p\ ^3\text{P}$ (5218 à 5221 Å). Le niveau d'énergie du terme $4p\ ^3\text{P}$ est $131\,767\ \text{cm}^{-1}$ soit 16,34 eV. La valeur de v_m est alors $2,78 \times 10^6\ \text{m/s}$. L'énergie du faisceau à laquelle cette transition serait le plus intense serait de l'ordre de 1,5 MeV. Or nous voyons nettement les raies de Cl II, de 10 à 30 KeV, c'est à dire très loin du maximum d'excitation déduit du critère adiabatique de MASSEY. Mais, nous n'avons pas tenu compte, dans ce cas particulier, des niveaux métastables de Cl^+ , fournis dans la source d'ions. La désexcitation de ces niveaux s'opère au cours de collisions et n'est pas radiative. Leur durée de vie est donc très longue et leur présence dans la chambre de collision est fort probable (le temps de parcours des particules depuis la source jusqu'à la cible est de 5 μs à 30 KeV). L'excitation de ces métastables au cours de collisions avec l'hydrogène est alors possible, les différences d'énergie mise en jeu étant beaucoup plus faible que précédemment.

C) En fait, il semble que l'on ait observé Cl II, surtout parce que ses raies sont intenses dans le domaine des longueurs d'onde que nous avons exploré (de 6000 Å au proche U.V.). Par contre, si nous ne voyons pas de transitions de Cl I, c'est sans doute parce que les raies de forte intensité n'apparaissent pas dans la région spectrale étudiée.

Le diagramme de Grotrian concernant le premier spectre du chlore est en effet très resserré et les radiations intenses devraient être observées dans l'infra-rouge. L'une des raies les plus lumineuses se trouve à la limite du visible, à 8333 Å, et n'est pas détectable avec le photomultiplicateur utilisé.

C O N C L U S I O N

L'objet de ce travail était la réalisation et la mise au point d'une source d'ions lourds, en particulier d'ions métalliques, susceptibles d'être aisément montée sur un accélérateur électrostatique classique. Le but recherché n'a été que partiellement atteint puisque les essais réalisés à partir d'une admission de Cl_3Fe dans la source n'ont pas permis d'obtenir un faisceau d'ions Fe^+ exploitable. Par contre l'appareillage constitue une excellente source d'ions Cl^+ et Cl_2^+ .

Avec le même dispositif, l'utilisation d'autres composés tels que Cl_2Fe ou $\text{Fe}(\text{CO})_5$ pourra donner des résultats meilleurs en ions Fe^+ . Des essais sont également en cours avec admission de SiCl_4 en vue d'obtenir un faisceau d'ions Si^+ . Des résultats positifs avec ce composé seraient particulièrement intéressants car si il est facile d'obtenir des ions Si^+ à partir d'une source HF classique non modifiée alimentée en SiH_4 , l'utilisation de ce produit explosif à l'air est dangereuse et pourrait se traduire en cas de fuite accidentelle par la destruction de l'appareillage.

En outre, les analyses de masse que nous avons faites ont mis en évidence la richesse du spectre des ions obtenus et indiquent combien les mécanismes d'ionisation dans une source alimentée par un mélange gazeux sont complexes. Les nombreux processus qui interviennent dans l'excitation, l'ionisation et l'extraction rendent les résultats difficilement reproductibles.

Les bons résultats obtenus en ions Cl^+ ont permis de réaliser quelques expériences préliminaires avec ces ions. Après accélération à 20 KeV l'excitation du faisceau par une cible gazeuse a permis d'étudier un spectre très riche dans lequel on a identifié un très grand nombre de transitions dans Cl II . Avec une telle source et une tension d'accélération plus élevée, il sera possible d'obtenir un spectre très pur d'ions Cl^{n+} de charge plus élevée. Par application de techniques classiques dans notre laboratoire (beam-foil spectroscopy, beam-gas spectroscopy, effet Hanle) nous aurons ainsi la possibilité d'étudier différents paramètres atomiques et notamment de mesurer les durées de vie des niveaux excités.

B I B L I O G R A P H I E

S.BASHKIN et W.S.BICKEL

J.O.S.A. 57 - 1935 - (1967)

S.BASHKIN et I.MARTINSON

Communication privée (1970)

D.BLANC et A.DEGEILH

J.Physique et le Rad. - 22 - 230 - (1961)

J.P.BLEWETT et E.J.JONES

Phys. Rev. - 50 - 464 - (1936)

M.BOURIAN

Thèse de Docteur d'Université - Grenoble - N° 880-(1967)

J.P.BUCHET

Thèse de 3° cycle - Lyon - N° 233 - (1967)

I.CHAVET CHOUKA

Thèse de Doctorat - Paris - Orsay - (1965)

B.COBIC, D.TOSIC et B.PEROVIC

Nucl. Instr. Methods - 24 - 358 - (1963)

G.COUCHET

Thèse - Paris - Ann. de Phys. - 9 - 731 - (1954)

J.DESESQUELLES

Thèse Docteur Ingénieur - Nancy - (1963)

J. DESESQUELLES

Thèse Docteur - Lyon - n° 637 - (1970)

G.DO CAO

Thèse Docteur Ingénieur - Lyon - n° 337 - (1970)

H.E.DUCKWORTH

Rev. Sci. Instr. - 21 - 54 - (1950)

J.H.FREEMAN

Nucl. Instr. Methods - 22 - 306 - (1963)

FROLICH

Nukleonik - 1 - 183 - (1959)

M.D.GABOVICH

Pribory Tekh. Eksper. - 3 - 5 - (1967)

J.B.HASTED

Physics of Atomic Collisions - (1964)

C.C.KIESS et J.L. DE BRUIN

Research Nat. Bur. Std. - 23 - 443 - (1939)

J.KISTEMAKER et al.

Zeit F. Naturforsch - 10 a - 850 - (1955)

V.F.KOZLOV, V.I.MARCHENKO et Ya.M.FOGEL

Pribory Tekh. Eksper. - 1 - 25 - (1961)

V.F.KOZLOV, V.Ya.KOLOT et SUNG CHAI CHAI

Pribory Tekh. Eksper. - 6 - (1962)

V.F.KOZLOV, V.Ya.KOLOT et V.A.TKACHENKO

Pribory Tekh. Eksper. - 2 - 13 - (1966)

E.F.KRIMMEL

Nucl. Instr. Methods - 60 - 231 - (1967)

E.F.KRIMMEL

Rev. Sci. Instr. - 37 - 678 - (1966)

I.LANGMUIR et K.COMPTON

Rev. Modern Phys. - 3 - 191 - (1931)

I.LANGMUIR et J.B.TAYLOR

Phys. Rev. - 51 - 753 - (1937)

G.J.LOCKWOOD

Rev. Sci. Instr. - 37 - N° 2 - 226 - (1966)

H.LQB et A.SCHARMANN

"Les sources d'ions" - Kerntechnik - Dtsch, 1 - 1 - 7 - (1962)
(Traduction N° A - 1726 - 1964)

C.D.MAGNUSON, C.E.CARLSTON, P. MAHADEVAN et A.R.COMEAUX

Rev. Sci. Instr. - 36 - 136 - (1965)

L.L.MARINO, A.Ch.SMITH et E.CAPLINGER

Phys. Rev. - 128 - 2243 - (1962)

R.MASIC, J.M.SAUTTER et R.J.WARNECKE

Nucl. Instr. Methods - 71 - 339 - (1969)

Ch.MOORE

A Multiplet Table of Astrophysical Interest (1945)

Ch.MOORE

Atomic Energy Levels - N.B.S. - 467 - (1949)

K.O.NIELSEN

Nucl. Instr. - 1 - 289 - (1957)

V.I.RAIKO, M.S.IOFFE et V.S.ZOLATOREV

Pribery Tekh. Eksper. - S.S.S.R. - 1 - 29 - (1961)

W.L.RAUTENBACH

Nucl. Instr. Methods - 9 - 199 - (1960)

A.N.SERBINOV

Pribery Tekh. Eksper. - S.S.S.R. - 3 - 39 - (1958)

A.R.STRIGANOV et N.S.SVENTITSKII

Tables of Spectral Lines of Neutral and Ionized Atoms
Translated from Russian (1968)

P.C.THONEMANN

Prog. Nucl. Phys. - 3 - 219 - (1953)

M.VON ARDENNE

Tabellen Zur Angewandten Physik - Tome I - (1962)

V.VON ENGEL

Production of Charged Particules - Oxford - at the Clarendon Press - (1965)

J.F.WASSERBAUER

A.I.A.A. - Electric Propulsion Conférence - Colorado Springs -
Paper N° 63 029 - 63 - (1963)

W.L.WIESE, M.W.SMITH et B.M.MILES

Atomic Transition Probabilities - N.B.S. - 22 - (1969)

Vu.

Les Membres du Jury

A. SARAZIN

M. DUFAY

J. D'INCAN

J. DESESQUELLES

Vu et approuvé

Le Directeur de l'U. E. R.
de Physique Nucléaire

Professeur A. SARAZIN

Le Directeur de l'U. E. R de Physique

Professeur M. DUFAY

Vu et accordé le permis d'imprimer

LYON, le 30 Avril 1971

Le Président de l'Université
Claude Bernard

J. BOIDIN

